

SÉRIE A, N° 3182

N° D'ORDRE :

4054

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

PIERRE LUCASSON

1^{re} THÈSE. — IRRADIATION A BASSE TEMPÉRATURE DE MÉTAUX DE
TRANSITION DANS UNE PILE ATOMIQUE.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 5 juin 1958 devant la Commission d'examen.

M. PERRIN..... *Président.*

Mlle CAUCHOIS..... } *Examineurs.*
M. FRIEDEL..... }

PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959

SÉRIE A, N° 3182

N° D'ORDRE :

4054

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

PIERRE LUCASSON

1^{re} THÈSE. — IRRADIATION A BASSE TEMPÉRATURE DE MÉTAUX DE
TRANSITION DANS UNE PILE ATOMIQUE.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 5 juin 1958 devant la Commission d'examen.

M. PERRIN.....	<i>Président.</i>
Mlle GAUCHOIS.....	} <i>Examineurs.</i>
M. FRIEDEL.....	



PARIS

MASSON ET C^{ie}, ÉDITEURS

LIBRAIRES DE L'ACADÉMIE DE MÉDECINE

120, BOULEVARD SAINT-GERMAIN

1959

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen J. PÉREZ

PROFESSEURS

G. JULIA	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure.	QUENEY	T	Météorologie et dynamique atmosphérique.
FOCH	T	Mécanique physique et expérimentale.	GALLIEN	T	Embryologie.
PAUTHENIER	T	Électrotechnique générale	EICHHORN	T	Biologie végétale (P.C.B.).
DE BROGLIE	T	Théories physiques.	D ^e CUGNAC	T	Biologie végétale (P.C.B.).
PRENANT	T	Anatomie et Histologie comparées.	M ^l le CAUCHOIS	T	Chimie physique.
GARNIER	T	Géométrie supérieure.	THELLIER	T	Physique du Globe.
PÉRÈS	T	Mécanique des fluides et applications.	L'HÉRITIER	T	Génétique.
LAUGIER	T	Physiologie générale.	GRIVET	T	Radioélectricité.
M. CURIE	T	Physique (S.P.C.N.).	PONCIN	T	Mécanique des fluides.
BARRABÉ	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.	DUBREIL	T	Arithmétique et théorie des nombres.
G. DARMOIS	T	Calcul des probabilités et Physique mathématique.	QUELET	T	Chimie organique.
J. BOURCART	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	CAGNIARD	T	Géophysique appliquée.
PLANTEFOL	T	Botanique.	CHAMPETIER	T	Chimie macromoléculaire.
GRASSÉ	T	Évolution des êtres organisés.	CUVILLIER	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.
PRÉVOST	T	Chimie organique.	JUNG	T	Pétrographie.
BOULIGAND	T	Application de l'analyse à la Géométrie	TRILLAT	T	Microscopie et diffraction électronique.
CHAUDRON	T	Chimie appliquée.	WIEMANN	T	Chimie organique et structurale.
VYANT	T	Minéralogie.	JACQUINOT	T	Spectroscopie et Physique céleste.
TEISSIER	T	Zoologie.	VASSY	T	Physique de l'atmosphère.
MANGENOT	T	Biologie végétale.	DESTOUCHES	T	Théories physiques.
P. AUGER	T	Physique quantique et Relativité.	M. PRUVOST	T	Géologie.
MONNIER	T	Physiologie des fonctions.	AMIEL	T	Chimie générale (P.C.B.).
PIVETEAU	T	Paléontologie.	HOCART	T	Minéralogie.
ROCARD	T	Physique (E.N.S.).	J.-P. MATHIEU	T	Physique (P.C.B.).
H. CARTAN	T	Mathématiques (E.N.S.).	COUTEAUX	T	Biologie animale (P.C.B.).
LAFFITTE	T	Chimie générale.	MAY	T	Biologie animale (P.C.B.).
FAYARD	T	Mécanique générale.	CHROQUET	T	Calcul diff. et intégral.
COULOMB	T	Physique du Globe.	FELDMANN	T	Biologie (P.C.B.).
M ^l le COUSIN	T	Biol. animale (S.P.C.N.).	GUINIER	T	Physique génér. (P.C.B.).
CHRÉTIEN	T	Chimie minérale.	JOST	T	Physiologie comparée.
P. DRACH	T	Zoologie.	FORTET	T	Calcul des probabilités.
KASTLER	T	Physique.	SCHWARTZ	T	Méthodes mathématiques de la Physique.
EPHROSSI	T	Génétique.	CHOUARD	T	Physiologie végétale.
WURMSER	T	Biol. physico-chimique.	MALAVARD	T	Aviation.
RIVIÈRE	T	Géologie (S.P.C.N.).	BRELOT	T	Calcul différentiel.
GAUTHERET	T	Biologie végétale (P.C.B.).	NORMANT	T	Chimie organ. (P.C.B.).
LUCAS	T	Recherches physiques.	BÉNARD	T	Chimie (P.C.B.).
A. THOMAS	T	Biologie cellulaire.	BUVAT	T	Botanique (E.N.S.).
ARNULF	T	Optique appliquée.	DUGUÉ	T	Statistiques mathématiques.
M. MORAND	T	Enseignement de Phys.	GELOSO	T	Chimie (S.P.C.N.).
SOLEILLET	T	Physique.	SOULAIRAC	T	Psychophysiologie.
FORTIER	T	Mécanique expérimentale des fluides.	ULRICH	T	Physiologie végétale.
DANJON	T	Astronomie.	MARÉCHAL	T	Optique théorique et appliquée.
LAPORTE	T	Physique générale et Radioactivité.	KIRRMANN	T	Théories chimiques.
JANET	T	Mécanique analytique et Mécanique céleste.	CHADEFAUD	T	Botanique.
PETIT	T	Biologie maritime.	DESTRIAU	T	Physique (M.P.C.).
			M ^l le LE BRETON ..	T	Physiologie générale.
			SALEM	T	Mathématiques générales

PROFESSEURS (suite).

LELONG	T	Mathématiques générales.	LEDERER	T	Chimie biologique.
DEVILLERS		Anatomie et Histologie comparées.	M ^{me} DUBREIL	T	Mathématiques (E.N.S.).
EHRESMANN	T	Topologie algébrique.	M ^{me} LELONG	T	Mathématiques (E.N.S.).
FRANÇON		Physique (S.P.C.N.).	COTTE	T	Physique (M.P.C.).
GLANGEAUD	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	J.-E. DUBOIS	T	Chimie (S.P.C.N.).
GODEMENT	T	Mathématiques (M.P.C.).	LAMOTTE	T	Zoologie (E.N.S.).
PISOT	T	Calcul des probabilités.	MICHEL	T	Chimie (S.P.C.N.).
E. ROCH	T	Géologie.	OLMER	T	Energétique générale.
SCHATZMANN		Astrophysique.	ROUAULT	T	Physique (Enseignem.).
TERMIER	T	Paléontologie stratigraphique.	GAUTHIER	T	Mécanique appliquée.
ZAMANSKY	T	Mathématiques générales.	BARCHIEWITZ		Chimie physique.
JOLIOT	T	Physique nucléaire et Radioactivité.	BROSSEL		Physique atomique.
LENNUIER		Physique (P.C.B.).	BUSER		Biologie animale (P.C.B.).
RIZET		Génétique.	CAMUS		Biologie végétale (P.C.B.).
M ^{me} TONNELAT		Théories physiques.	CASTAING		Physique générale.
DIXMIER		Mathématiques (M.P.C.).	CURIEN		Minéralogie et cristallog.
SOUCHAY		Chimie générale (P.C.B.).	MOYSE		Physiologie végétale.
AIGRAIN		Physique (P.C.B.).	NOIROT		Évolution des êtres organisés.
BRUSSET		Chimie minérale (P.C.B.).	PANNETIER		Chimie (P.C.B.).
M. LÉVY		Physique théorique.	POSSOMPÈS		Biologie animale (P.C.B.).
LENORMANT		Physiologie.	PULLMANN		Chimie théorique.
M ^{me} CHAIX		Chimie biologique.	TEILLAC		Physique nucléaire et Radioactivité.
M ^{me} HUREL-PY		Biologie végétale (P.C.B.).	TONNELAT		Biologie phys.-chimique.
PIAUX		Chimie (P.C.B.).	VILLE		Econométrie.
BRUN		Mécanique expérimentale des fluides.	WILLEMART		Chimie (P.C.B.).
			BELLAIR	T	Géologie (S.P.C.N.).

Secrétaire Général Ch. MONIER.

A MADEMOISELLE YVETTE CAUCHOIS

Professeur à la Faculté des Sciences,
Directeur du Laboratoire de Chimie Physique.

Hommage profondément reconnaissant.



Digitized by the Internet Archive
in 2026

A MONSIEUR et MADAME LOUIS TOURNIER

A MADAME LOUIS VEYRENC

Avant d'exposer ce travail, je tiens à dire ma profonde gratitude à Mlle Y. Cauchois qui a donné cette direction à mes recherches et en a suivi le déroulement avec la plus bienveillante attention.

M. le Haut-Commissaire F. Perrin a bien voulu s'intéresser dès l'origine à ce travail, le rendre possible à la pile de Saclay, et n'a cessé de lui porter un intérêt particulier. Qu'il me soit permis de lui exprimer mes sincères remerciements.

Je prie M. E. Grison, qui a eu la bonté de m'ouvrir les portes de son laboratoire de croire à ma reconnaissance. Il me faut remercier M. J. Blin des larges facilités de travail qu'il a bien voulu m'accorder. Je tiens à remercier tout particulièrement M. J. Friedel, dont les avis et les discussions m'ont été d'une aide précieuse.

De nombreux agents du C. E. N. de Saclay ont souvent facilité ma tâche avec compétence et sympathie. Je les en remercie, et tout particulièrement M. Delattre du Service de Physique des Piles et M. Kempf, pour des mesures de flux neutroniques et des discussions, M. Lespiaucq, du Service de Contrôle des rayonnements, M. Henry, du Service de Métallurgie Chimique, M. Chérel, du Service de Radio-Métallurgie, pour de nombreuses discussions, et M. A. Schlessler, à qui je n'ai jamais fait appel en vain pour les problèmes de mécanique.

IRRADIATION A BASSE TEMPÉRATURE DE MÉTAUX DE TRANSITION DANS UNE PILE ATOMIQUE ⁽¹⁾

Par PIERRE LUCASSON

INTRODUCTION

Des modifications de propriétés physiques assez importantes dues à l'effet Wigner peuvent se manifester dans des corps solides soumis au flux de neutrons rapides engendrés dans un réacteur nucléaire. Tout particulièrement dans le cas des métaux, les expérimentateurs s'aperçurent que les défauts de la structure cristalline produits sont mobiles à la température ordinaire. Il est nécessaire, pour les étudier, d'effectuer des irradiations à la température la plus basse possible.

Le travail dont l'exposé suit a consisté en la réalisation d'un dispositif d'irradiation refroidi par de l'azote liquide, dans la pile E. L. 2 de Saclay. Ce dispositif a servi à irradier quelques métaux de transition. Les variations de la résistance électrique des échantillons, pour un même flux neutronique intégré, diffèrent selon la nature du métal. A partir des résultats obtenus, j'ai essayé de comparer les résistivités provoquées par le même nombre d'atomes déplacés. D'autre part en mesurant les variations de résistivité des échantillons à intervalles de temps égaux, il m'a été possible d'étudier la régulation de la pile.

CHAPITRE PREMIER

Dispositif expérimental.

Le dispositif d'irradiation, refroidi par de l'azote liquide, a été réalisé dans un canal situé sur la face Nord de la pile E. L. 2. Ce canal est malheureusement horizontal et de petites dimensions, ce qui introduit

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de l'Université de Paris pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences physiques et soutenue le 5 juin 1958 devant la Commission d'examen.

des complications expérimentales particulières. Profond de 3,58 m, ce canal a, dans le graphite, au voisinage de la cuve, une section rectangulaire de 65×63 mm.

Le problème était d'y placer :

- une source de neutrons de fission : le convertisseur, capable de fournir un flux suffisamment intense,
- une enceinte isolée thermiquement,
- un récipient contenant les échantillons à irradier, refroidi par l'azote liquide.

Le convertisseur.

MÉCANISME DE CRÉATION DES DÉFAUTS DE STRUCTURE DANS UN SOLIDE SOUMIS A UN FLUX DE NEUTRONS. — Lorsque des neutrons pénètrent dans un solide, ils perdent une partie de leur énergie cinétique par chocs avec les noyaux. Au cours de ces chocs, si les neutrons ont une énergie suffisante, certains atomes sont projetés hors de leur position d'équilibre, dans le réseau cristallin. Cette position qui reste vide constitue alors une lacune. S'il a reçu une énergie cinétique suffisante, l'atome déplacé peut éventuellement déplacer d'autres atomes avant de se fixer en position interstitielle. Ce processus se poursuit jusqu'à ce que les atomes déplacés possèdent trop peu d'énergie pour pouvoir provoquer un déplacement. On a donc formation de paires de lacunes et d'atomes interstitiels.

Du fait des forces de liaison qui existent entre les atomes d'un réseau cristallin, un atome ne peut être déplacé que s'il reçoit une énergie cinétique supérieure à un certain seuil énergétique E_s . On ne connaît que peu de valeurs de E_s . Dans le tableau I j'ai reporté les seuils énergétiques de déplacement trouvés, pour le germanium par Klontz (36), pour le cuivre, par Eggen et Laubenstein (16) et Corbett et ses collaborateurs (11) et pour le nickel par Kenworthy (32) et Kenworthy et Neely (33).

TABLEAU I

Métal	E_s (en eV)	Auteurs
Cuivre	25 $\pm$ 1 22 $\pm$ 3	Eggen-Laubenstein Corbett and al. Klontz Kenworthy
Germanium	31	
Nickel	34,5 $\pm$ 1,5	

Nécessité d'employer un convertisseur. — Au seuil énergétique E_s , correspond une énergie minimum E_m que doit posséder la particule incidente pour pouvoir produire un défaut du réseau cristallin. E_m s'évalue aisément en considérant un choc central, et en écrivant la conservation de l'énergie cinétique et de la quantité de mouvement.

Soit m la masse du neutron, v_0 sa vitesse initiale, v sa vitesse après choc. Soit M la masse du noyau heurté supposé initialement au repos, V sa vitesse après collision. On peut écrire :

$$\begin{cases} \Delta E = E_0 - E = \frac{1}{2} m(v_0^2 - v^2) = \frac{1}{2} MV^2 \\ m(v_0 - v) = MV \end{cases}$$

en appelant ΔE l'énergie transmise à l'atome heurté, E_0 et E étant les énergies initiale et finale du neutron incident.

On en déduit :

$$\Delta E = \frac{4Mm}{(M+m)^2} E_0$$

et si $\Delta E = E$, on a :

$$E_0 = E_m = \frac{(M+m)^2}{4Mm} E.$$

Quand on irradie du cuivre : E_m est de l'ordre de 400 eV.

L'énergie maximum ΔE communiquée aux atomes déplacés (qui va conditionner leur possibilité de produire eux-mêmes d'autres défauts de structure) est proportionnelle à l'énergie des neutrons incidents.

Donc, dans un flux de neutrons :

1° les neutrons de faible énergie ne peuvent pas déplacer d'atomes d'un réseau cristallin par des chocs élastiques ;

2° le nombre de défauts produits par un flux de neutrons sera une fonction croissante du flux d'énergie correspondant.

Pour l'étude des dégâts produits par le rayonnement, l'idéal serait de disposer d'un flux de fission pur. Sauf cas très particuliers ⁽¹⁾, les neutrons thermiques ne peuvent être que gênants, car ils induisent en général dans l'échantillon une radioactivité, d'intensité maximum proportionnelle à l'intensité du flux thermique, qui rend difficile toute manipulation de l'échantillon, et dont le rendement, pour produire des défauts de réseau est faible et difficile à estimer. Nous reprendrons cette question plus loin.

⁽¹⁾ Les cas très particuliers concernent les corps susceptibles de donner une réaction (n, α) par absorption. Ils sont rares en dehors des matériaux fissiles et seuls le lithium et le bore possèdent des sections efficaces suffisantes pour que cette réaction soit pratiquement applicable à la production de défauts de structure.

La répartition énergétique des flux de neutrons dans quelques canaux de pile a été étudiée à Saclay par Raievski (54). Son travail montre que dans le canal central de E. L. 2 par exemple, le flux des neutrons d'énergie supérieure à 1 MeV est seulement 4 à 5 p. 100 du flux de neutrons d'énergie inférieure à 1 eV. Si l'on veut améliorer l'utilisation des neutrons de la pile, il est donc indispensable de « convertir » la plus grande partie possible des neutrons thermiques en neutrons de fission.

C'est le rôle du convertisseur qui est un récipient de matière fissile, muni d'un dispositif de refroidissement s'il y a lieu, destiné à obtenir un flux de fission lorsqu'on dispose d'un flux de neutrons thermiques. Ayant décidé d'utiliser un convertisseur, on doit faire face à deux sortes de problèmes concernant sa réalisation.

— Les premiers ont trait à la géométrie du convertisseur : encombrement, répartition spatiale du flux, etc.

— Les seconds concernent ses caractéristiques physiques : énergie dégagée, répartition spectrale et intensité des flux obtenus.

Enfin l'expérimentateur pourra s'interroger quant à l'incidence de ces caractéristiques sur la formation des dégâts de rayonnement et l'évaluation de ceux-ci.

RÉALISATION DU CONVERTISSEUR. — Le problème primordial du convertisseur est celui du rendement. Il doit fournir le flux rapide le plus élevé possible, et seule la nécessité d'un refroidissement suffisant limite celui-ci. La robustesse et la facilité de défournement doivent également être considérées. Les convertisseurs de Saclay avaient jusqu'ici été placés dans les grands canaux de la pile, et la question de l'encombrement ne s'était pas posée. Dans le cas particulier du petit canal N. 4, ce fut au contraire le problème de l'encombrement qui prima tous les autres.

DÉTERMINATION DE LA FORME A DONNER AU CONVERTISSEUR. — *Examen d'un convertisseur « classique ».* — Les convertisseurs horizontaux utilisés à Saclay sont essentiellement constitués de la façon suivante :

Un cylindre creux d'uranium naturel, de 9 mm d'épaisseur, est placé à l'intérieur d'un gainage d'aluminium. La paroi extérieure est elle-même entourée d'une chemise cylindrique en aluminium, munie de deux ajutages d'arrivée et de départ de l'eau de refroidissement, soudés à la chemise. Une spirale, également en aluminium, canalise l'eau de refroidissement, l'obligeant à lécher toute la surface extérieure du gainage avant de ressortir.

ENCOMBREMENT. — La section transversale du fond du canal est un rectangle de 65 mm de largeur et 63 mm de hauteur. Le diamètre

maximum admissible pour le cylindre extérieur est donc 62 mm. L'épaisseur des tôles d'aluminium est 1 mm, l'intervalle compris entre A et C, destiné au refroidissement, mesure 6 mm. On voit que le diamètre de la cavité dans laquelle il faudra loger le dispositif d'irradiation est réduit à 26 mm. Ce dispositif comportera une enceinte isolante à double paroi, contenant un récipient de quartz qui renferme les échantillons. Il serait donc intéressant d'augmenter le diamètre de la cavité disponible qui est faible.

Ces considérations, jointes à quelques évaluations d'un caractère plus quantitatif, m'ont conduit à adopter les solutions suivantes :

— Pour augmenter le diamètre de la cavité disponible, j'ai supprimé la spirale et adopté un chemisage de section rectangulaire, épousant la forme du canal, et tangent au gainage qui protège le cylindre d'uranium.

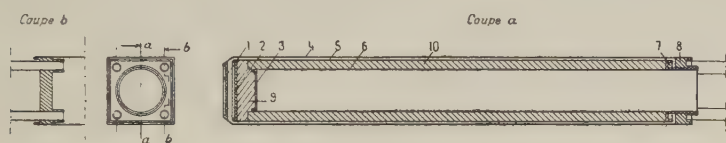


Fig. 1.

Le diamètre de la cavité a ainsi pu être accru de la différence des diamètres, soit 12 mm.

— Afin de diminuer les pertes de flux dues aux extrémités ouvertes, j'ai obturé le convertisseur, du côté de la cuve de pile, par une plaque d'uranium. De plus, j'ai augmenté la longueur du cylindre U qui est passée de 30 à 40 cm.

Le gain de flux rapide réalisé au fond du convertisseur par ces deux dispositions m'a permis de diminuer de 1 mm l'épaisseur du cylindre d'uranium U, tout en conservant un flux maximum comparable à celui d'un convertisseur usuel.

Au total, le diamètre de la cavité A' est accru de 14 mm et son volume a doublé.

La figure 1 représente des coupes transversales et longitudinales de ce convertisseur. On y distingue la partie fissile, comprenant un long cylindre (10) de 8 mm d'épaisseur, et la plaque (9) d'obturation dont l'épaisseur maximum est 17 mm, tous deux en uranium naturel. Ces deux pièces ont été introduites à frottement dur dans la jaquette extérieure de gainage (5), en aluminium. Le gainage intérieur (6) délimite un volume disponible cylindrique de 40 mm de diamètre sur 380 mm de longueur. On a construit, en même temps que le conver-

tisseur, une barre de défournement que représente en coupe la figure 2. Le principe en est le suivant : un manchon de caoutchouc épais (5), peut être comprimé par l'intermédiaire d'une tige (2) filetée à une extrémité, entre un plateau (6) porté par (2) et un embout conique (4), porté par un tube d'acier doux (3) concentrique à (2). La compression est commandée par un écrou situé à l'extrémité opposée au manchon. Pour s'en servir, on introduit le manchon dans le convertisseur dont le diamètre intérieur est légèrement supérieur, et l'on visse l'écrou. Le diamètre du manchon augmente à la fois par la compression longitudinale qu'il subit et parce qu'il glisse sur le cône (4), ce qui a pour effet de l'appliquer fortement contre la paroi interne du convertisseur.

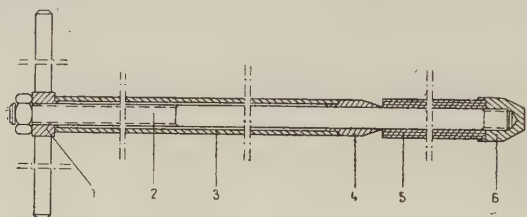


Fig. 2.

L'ensemble barre-convertisseur est alors rigidement lié, et il est possible de le manœuvrer d'un seul bloc. Il suffira de desserrer l'écrou pour libérer la barre.

CARACTÉRISTIQUES DU CONVERTISSEUR. — Lorsque le présent travail fut commencé, les rayonnements γ et neutroniques dans les canaux des piles ou les convertisseurs étaient très mal connus en général, tant au point de vue de leur répartition spatiale qu'au point de vue de leurs spectres d'énergie. Par suite, il ne paraissait pas possible qu'un travail « en pile » put conduire à une évaluation même grossière du nombre des défauts de structure que ces rayonnements étaient susceptibles de produire dans un corps solide pendant un temps donné (Dienes (13)). Des travaux effectués depuis lors aux Etats-Unis ont, en principe, complètement transformé la situation. Plusieurs auteurs (Seitz et Kœhler (57) ; Tobin (65)) font état de spectrométries soigneuses des flux de neutrons, réalisées dans quelques centres comme Oakridge qui permettraient de mettre en œuvre les calculs des théoriciens concernant l'évaluation du nombre des défauts produits (Snyder et Neufeld (60)), et, jointes à l'emploi de très basses températures (20° K) (Coltman, Blewitt, Noggle (8)) rendraient quantitatif l'emploi des bombardements en pile pour produire des défauts de structure dans les solides. La précision atteinte serait au moins égale à celle que l'on obtenait

jusqu'ici par l'emploi des accélérateurs. Cependant, la seule étude publiée à ce jour et applicable au cas présent est celle de Raievski (54).

DÉTERMINATION DES CARACTÉRISTIQUES DU CONVERTISSEUR : DIMENSIONS ET RÉPARTITION SPATIALE DU FLUX. — La forme choisie pour l'enveloppe extérieure du convertisseur fixait le diamètre extérieur du « tube » d'uranium à 58 mm. Je me suis fixé pour but de construire un convertisseur qui donnerait un flux de fission comparable en intensité au flux disponible dans un convertisseur usuel (utilisé dans un canal de plus grande dimension) et dans lequel la répartition spatiale du flux serait plus homogène. Pour cela, les flux dans les deux convertisseurs ont été calculés par la méthode utilisée par Raievski (54) et comparés. Le calcul ne donne qu'un ordre de grandeur des flux neutroniques.

En négligeant la dépression de flux thermique engendrée par le convertisseur, et supposant qu'il est radial par rapport à la cuve pour la plaque terminale et radial par rapport à l'axe du canal pour le tube d'uranium, on trouve pour expression du flux de fission φ_f engendrée, sur l'axe du canal :

a) *Par la plaque terminale* (fig. 3 a) :

$$\varphi_f(X) = 0,225 \cdot 10^{12} \left[E \log \frac{R^2 + (X-E)^2}{X-E^2} - X \log \frac{R^2 + (X-E)^2}{(R^2 + X)^2} \right. \\ \left. + 2X \log \frac{X-E}{X} - 2R \left(\text{Arc tg } \frac{X-E}{R} - \text{Arc tg } \frac{X}{R} \right) \right]$$



Fig. 3.

où :

X = distance d'un point de l'axe à la face proche de la cuve,

E = épaisseur de la plaque,

R = rayon de la plaque

qui permet de calculer $\varphi_f(X)$ par points.

Quelques valeurs de $\varphi_r(X)$ sont données par le tableau ci-dessous.

$(X - E)$ cm	$10^{-12} \varphi_r(X)$ en $n/cm^2/seconde$
0	1,12
0,3	0,85
0,8	0,58
1,3	0,42
2,3	0,24
3,3	0,16
4,3	0,11
8,3	0,034
10	0,008
30	0,003

b) Par le tube d'uranium (fig. 4) :

$$\varphi_r(X) = \frac{S}{4\pi R} \left[(\theta_2 - \theta_1)(1 - ax) - aR \log \frac{\sin \theta_2}{\sin \theta_1} \right]$$

qui permet de calculer $\varphi_r(X)$ par points. Dans cette formule :

X = distance d'un point de l'axe quelconque au point O de l'axe
situé sur la face proche de la cuve (fig. 1.8).

θ_1 } = angles sous lesquels on voit de X les ouvertures terminales
 θ_2 } du « tube ».

x = distance d'un point courant du convertisseur à l'origine O.

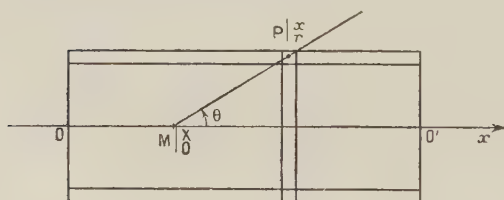


Fig 4 a.

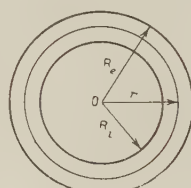


Fig. 4 b.

X cm	$10^{-11} \varphi_f(X)$ $n/cm^2/seconde$
2,5	9,8
5	10,4
10	10,1
20	7,74
30	5,85
35	4,17
37,5	3,28

Les résultats sont reportés sur le tableau ci-joint.

La répartition du flux de fission le long de l'axe du convertisseur est représentée dans le diagramme de la figure 11 en coordonnées semi-logarithmiques.

ÉNERGIE THERMIQUE PRODUITE PAR LE CONVERTISSEUR ET REFROIDISSEMENT. — La plus grande partie de l'énergie dégagée dans l'uranium se retrouve sous forme de chaleur qu'il faut évacuer. De plus, il faut s'assurer qu'il ne se produira pas de point chaud, à une température telle que le gainage risquerait d'en être détérioré. Il suffit ici d'évaluer des limites supérieures de l'énergie thermique dégagée et des températures susceptibles d'être atteintes.

Lorsque la pile fonctionne à une puissance de 2 000 kW, l'énergie dégagée dans le combustible est de 0,65 W par gramme. Pour évaluer une limite supérieure de l'énergie dégagée dans le convertisseur, j'ai fait les hypothèses suivantes :

1° J'admets que le flux de neutrons thermiques au fond du canal vide est égal au flux moyen pour l'ensemble de la pile (à l'intérieur de la cuve). Dans ce cas l'énergie dégagée dans le fond du convertisseur est représentée par : $0,65 \times \frac{\bar{\varphi}}{\bar{\varphi}_0}$ où $\bar{\varphi}$ est le flux thermique moyen dans l'épaisseur de l'uranium, $\bar{\varphi}_0$ est le flux thermique au fond du canal.

2° Le dégagement d'énergie par gramme d'uranium décroît de façon linéaire quand on s'éloigne de la cuve :

$$Q = Q_0(1 - ax)$$

en fonction de la distance.

L'énergie dégagée serait dans ces conditions : dans la plaque d'obturation terminale :

$$Q_p = 0,65\pi R^2 \rho \cdot \frac{\bar{\varphi}}{\bar{\varphi}_0} = 430 \text{ W}$$

où ρ est la densité de l'uranium, $\rho = 19$ et dans le cylindre creux :

$$Q_c = 0,65\pi \frac{5,8^2 - 4,2^2}{4} \cdot 19 \frac{\bar{\varphi}}{\bar{\varphi}_0} \int_0^{39} (1 - ax) dx = 3 500 \text{ W.}$$

D'où l'énergie totale à évacuer : 4 000 W.

Afin d'avoir une grande marge de sécurité, capable de pallier l'obturation accidentelle d'une canalisation ou une baisse possible de pression d'eau, les canalisations ont été largement dimensionnées. Une expérience préliminaire, effectuée au rez-de-chaussée d'un bâtiment de Saclay, la pression de l'eau étant assurée par la tour d'eau centrale, montra que les canalisations permettaient dans ces conditions d'évacuer 15 kW avec une variation de température de l'eau de 20° C. Après quelques mois d'utilisation, le service technique de la pile fut amené à

employer un circuit d'eau permutée pour refroidir les convertisseurs. Le débit fut réduit de moitié environ. La marge de sécurité restait cependant amplement suffisante, et les températures enregistrées à l'intérieur du convertisseur n'en furent pas affectées.

TEMPÉRATURES DES POINTS CHAUDS. — *Cas du cylindre creux en uranium.* — La partie la plus chaude sera naturellement la plus proche de la pile. Considérons une tranche du cylindre de longueur 1 cm (fig. 4b). Soient R_e et R_i les rayons extérieur et intérieur, et soit $R_i < r < R_e$. La quantité de chaleur produite par unité de temps $\frac{dQ}{dt}$ est intégralement évacuée par la surface extérieure. On a donc :

$$\frac{dQ(r)}{dt} = \rho \frac{W_0}{J} \pi (r^2 - R_i^2) = -2\pi r \cdot C \cdot \frac{d\theta}{dr}$$

où $Q(r)$ est la quantité de chaleur produite à l'intérieur du cylindre de rayon r ,

$W_0 = 0,65$ W/gramme,

ρ = masse spécifique de l'uranium = 19,

C est la conductibilité thermique de l'uranium, $C = 6 \cdot 10^{-2}$ cgs,

θ est la température,

J est l'équivalent mécanique de la calorie = 4,2 J/calorie.

On a :

$$\frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0} \frac{\rho W}{2JC} (r^2 - R_i^2) \frac{dr}{r} = -d\theta$$

soit :

$$\theta_i - \theta_e = \frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0} \frac{\rho W}{2JC} R_i^2 \log \left[\frac{R_e}{R_i} - \frac{R_e^2 - R_i^2}{2} \right]$$

$$R_i = 2,1 \text{ cm}$$

$$R_e = 2,9 \text{ cm}$$

d'où :

$$\theta_i - \theta_e = 1205 \text{ C.}$$

Cas de la plaque terminale du convertisseur. — On voit que la température de l'intérieur du cylindre du convertisseur reste faible. Par suite, dans la plaque, l'évacuation de la chaleur produite dans la masse se fait de façon non seulement longitudinale, mais encore radiale.

On peut considérer que le convertisseur est constitué du cylindre précédemment étudié, et que le fond est constitué d'un petit cylindre de 2,1 cm de rayon, de 1,7 cm d'épaisseur introduit dans le premier à son extrémité. Soit Ox son axe, $x = 0$ et $x = 1,7$ les plans de ses faces. O' le point de Ox d'abscisse 1,7, O étant le fond du canal. Il est évident que le point O' est le plus mal refroidi de tout le convertisseur, car :

a) De tout le convertisseur, OO' représente la plus grande épaisseur d'uranium, qui est le matériau le plus mauvais conducteur de l'ensemble.

b) De toute la plaque terminale, O' est le point le plus éloigné de la couche d'eau de refroidissement, dans un plan perpendiculaire à Ox.

c) OO' se trouve dans la région où le flux neutronique est le plus intense.

Pour tenir compte de l'évacuation de chaleur radiale et avoir une idée de la différence de température qui existe entre O et O', je remplace le cylindre qui a pour rayon 2,1 cm par une demi-sphère, centrée en O', de rayon 2,5 cm (fig. 3b).

Écrivant que la chaleur produite est évacuée par la surface, si $O < r < 2,5$, on a :

$$\frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0} \frac{\rho W}{J} \times \frac{2}{3} \pi r^3 = 2\pi r^2 C \frac{d\theta}{dr}$$

d'où :

$$\theta_i - \theta_e = \frac{\bar{\varphi}}{\varphi_0} \frac{\rho W}{3JC} \quad \theta_i - \theta_e = 29^\circ.$$

En fait, la température du point le plus chaud fut mesurée avec un thermocouple, la pile marchant à 2 000 kW de puissance : $\theta_i = 38^\circ$. L'eau de refroidissement entraînait dans le canal à la température de 15° C.

On avait donc une différence de température de 23° , en bon accord avec cette évaluation.

On voit que le refroidissement est excellent. Dans ces conditions, il ne m'a pas semblé utile de tenir compte des différences de températures dues à l'inhomogénéité de la circulation d'eau, tout particulièrement le long des génératrices de contact entre le gainage extérieur du tube d'uranium et la chemise parallélépipédique. Elles sont négligeables.

Ces mesures de températures étaient faites, le convertisseur étant à moitié rempli par une perche de bois qui portait le thermocouple. Lorsque l'appareil était mis en place et l'ampoule d'irradiation garnie d'échantillons métalliques, la température atteignait 55° C dans l'ampoule.

Vérification des caractéristiques du convertisseur. — Toutes les évaluations qui précèdent étaient fondées sur la connaissance, très rudimentaire à l'époque où elles furent faites, des flux dans les canaux et convertisseurs. Les flux, même thermiques, étaient mal connus. Cette étude préliminaire à la mise en fabrication d'un convertisseur était basée sur l'évaluation suivante :

— au fond du canal N. 4 on évaluait le flux thermique à $1,1 \cdot 10^{12}$ neutrons/(cm².sec) à 1 000 kW de puissance,

— à 30 cm du fond du canal, le flux était réduit à la moitié de cette valeur.

J'avais admis une décroissance linéaire à seule fin de faciliter le calcul.

Il a été, par la suite, possible de réunir quelques données supplémentaires (Kempf et Navarre (31)).

Les flux thermiques furent mesurés en valeur absolue en utilisant la réaction d'absorption : $\text{Au}^{197} (n, \gamma) \text{Au}^{198}$. On obtient un isotope dont la période est de 2,7 jours, dont on mesure l'activité en coïncidences β, γ . Afin de séparer les effets des neutrons thermiques du reste des neutrons, à toute pastille d'or était jointe une pastille d'or recouverte de cadmium dont la section efficace de résonance est très grande pour des neutrons d'énergie inférieure à 0,5 eV. La précision ainsi obtenue dans l'évaluation du flux thermique correspond à une erreur relative inférieure à ± 5 p. 100.

La connaissance des flux rapides reste encore malaisée. Les flux en neutrons de fission furent évalués en valeur absolue en quelques points de l'axe du convertisseur par activation du soufre. On utilise la réaction $\text{S}_{32} (n, p) \text{P}_{32}$. On obtient un phosphore radioactif dont on mesure l'activité γ . Le seuil de cette réaction est 1 MeV, mais le seuil effectif 3,5 MeV (Hughes, p. 100 (26)).

La section efficace correspondant à cette réaction est malheureusement très variable avec l'énergie, et introduit une incertitude de 40 p. 100 au moins, dans l'évaluation de sa valeur, moyennée sur un spectre de fission. La répartition spatiale des neutrons rapides fut obtenue dans l'axe du convertisseur en irradiant un ruban d'aluminium. On a utilisé la réaction $\text{Al}^{27} (n, \alpha) \text{Na}^{24}$ dont le seuil est trop élevé pour donner lieu à des mesures absolues (seuil effectif de 8,7 MeV pour un seuil de 3,3 MeV). Cette répartition est en bon accord avec celle indiquée figure I.11.

Chaque mesure fut faite dans le canal à l'intérieur du convertisseur,

TABLEAU

Flux en $n/\text{cm}^2/\text{seconde}$.

	Canal vide		Dans le convertisseur	
	Postulé	Mesuré	Mesuré	
Flux thermique au fond du canal à 2 000 kW	$2,2 \cdot 10^{12}$ avec graphite	$3,7 \cdot 10^{12}$ sans graphite	$1,25 \cdot 10^{12}$	
	Postulé	Mesuré	Évalué	Mesuré
Flux rapide à 2 000 kW	10^{11}	Non mesuré	$1,1 \cdot 10^{12}$	$0,9 \cdot 10^{12}$ $1,10^{12}$

puis celui-ci fut défourné et les mêmes mesures furent faites dans le canal sans convertisseur.

Les valeurs absolues sont réunies dans le tableau ci-dessus.

L'accord entre les valeurs absolues mesurées et évaluées du flux de fission dans le convertisseur qui semble bon est certainement fortuit. Les valeurs mesurées du flux de neutrons thermiques au fond du canal vide semblent incompatibles. En effet, la présence du graphite devrait augmenter la valeur du flux thermique mesuré. Cette anomalie sera expliquée plus loin.

FORMATION DES DÉFAUTS DE STRUCTURE DANS UN SOLIDE LORS D'IRRADIATION EN PILE. — Dans un canal de pile en fonctionnement existent toutes sortes de rayonnements. Aux neutrons, de toute énergie, il convient en particulier d'ajouter des rayonnements γ et β d'origines diverses (fission, captures, chocs inélastiques, radioactivité acquise du combustible). Un échantillon placé dans un canal subit donc l'action de tous ces rayonnements à la fois. De plus, devenant lui-même radioactif, il est alors soumis à l'action de sa radioactivité propre qui peut devenir importante, donner lieu à des rayonnements d'énergie suffisante pour provoquer la formation de défauts de réseau cristallin.

Cependant, on admet que dans un solide irradié dans une pile atomique, les défauts de réseau sont produits par l'action des neutrons rapides. Il est intéressant d'essayer de voir dans quelle mesure il est possible de négliger l'action de tel rayonnement vis-à-vis de tel autre dans des conditions expérimentales données.

EFFET DES RAYONNEMENTS γ PROVENANT DU COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE. — On sait que les rayons γ sont absorbés dans la matière, en cédant aux électrons leur énergie, en totalité, par effet photoélectrique ou en partie par effet Compton. Pour les énergies supérieures à 1 MeV, il y a également production de paires. Dugdale (15) avait signalé que les électrons ainsi libérés devaient pouvoir produire des défauts de réseau. Cleland et al. (6) avaient montré que leurs effets sont loin d'être négligeables en irradiant des échantillons de germanium avec le rayonnement d'une source de cobalt 60 de 900 curies. Ils avaient ainsi déterminé une section efficace de déplacement pour le germanium, σ comprise entre 13 et 15 millibarns. Thomson et Holmes (63) (64) ont successivement étudié sur le même échantillon les augmentations de module d'Young du cuivre, provoquées par des irradiations aux neutrons, en pile, et par l'exposition au rayonnement γ de la source de cobalt 60 citée ci-dessus. Ces auteurs montrent qu'à température ordinaire, si l'on compare les résultats obtenus, on peut en déduire le rapport du nombre d'atomes déplacés par des nombres égaux de neutrons de 1 MeV et de photons γ du cobalt :

$$\frac{n_{\gamma}}{n_n} = \frac{\text{nombre d'atomes déplacés par } N \text{ photons } \gamma \text{ du cobalt 60}}{\text{nombre d'atomes déplacés par } N \text{ neutrons rapides}} = \frac{1}{80}.$$

L'effet des rayons γ dépend de leur énergie. Or la répartition énergétique des rayons γ produits dans une pile atomique est mal connue. Motz (48) a déterminé expérimentalement l'intensité du fond continu de rayonnement γ (en négligeant les raies émises) en étudiant les électrons projetés par effet Compton d'une feuille de béryllium placée à la sortie d'un canal expérimental, pour une pile modérée à l'eau (Water boiler). La source de rayons γ était une barre d'uranium 235 pur. Il trouve que le nombre de photons émis par intervalle d'énergie compris entre 0,5 et 12 MeV décroît exponentiellement avec l'énergie. Ces photons proviennent à la fois : 1^o des photons émis lors de la fission, 2^o des émissions γ qui suivent la décroissance β des produits de fission, 3^o des rayons γ de capture, qui accompagnent en particulier la formation de l'uranium 236. On admet que pour chaque fission, une énergie de 12,2 MeV est ainsi émise sous forme de rayonnement γ . Le tableau suivant, tiré de Gauzit et Kahan (21), donne un spectre normalisé correspondant à cette énergie totale :

Intervalle d'énergie en MeV	Énergie moyenne du photon MeV	Nombre de γ par fission	Énergie totale en MeV
0,5 à 2	1	9,31	9,31
2 à 4	3	0,75	2,25
4 à 6	5	0,099	0,495
6 à 8	7	0,0154	0,1078
8 à 10	9	0,00129	0,0241

Nous admettrons que le spectre γ émis dans une pile à uranium naturel est identique à celui-ci. On voit que la plus grande partie du rayonnement a une énergie comprise entre 0,5 et 2 MeV et pour l'énergie moyenne par photon, on trouve 1,2 MeV. Les énergies des photons émis par le cobalt 60 sont de 1,17 et 1,33 MeV, en quantités sensiblement égales. On ne fera pas une erreur importante dans l'évaluation du nombre de défauts formés par les rayons γ provenant du combustible nucléaire en confondant ces derniers avec les rayons γ du cobalt.

Essayons d'évaluer quelles seront les proportions de rayonnements γ et neutroniques rapides en présence dans des conditions normales d'irradiation.

On sait que la fission d'un noyau d'uranium 235 libère une énergie considérable (environ 188 MeV) répartie entre les fragments de fission qui en emportent la plus grande partie (167 MeV) et les différents rayonnements émis. Parmi ceux-ci, 2,5 neutrons sont émis en moyenne, avec une énergie cinétique de 2 MeV, accompagnés en moyenne, d'après

l'évaluation ci-dessus, de 10 photons γ , d'une énergie de 1,2 MeV. Il convient d'y ajouter les rayons γ dus aux réactions de capture dans les matériaux de structure. Faute de données plus précises nous considérerons que 5 photons de 1,2 MeV sont encore émis. Cela donne en tout par fission : environ 2,5 neutrons de 2 MeV d'énergie moyenne, environ 15 photons de 1,2 MeV d'énergie moyenne.

Admettons que la proportion des neutrons de fission et des photons γ soit, dans les canaux, celle des intensités superficielles aux parois de la cuve et évaluons celles-ci, en rappelant un résultat connu.

Considérons une source de rayonnement homogène, d'intensité spécifique I_s (c'est-à-dire qu'elle émet I_s particules par seconde et par centimètre cube). Soit P un point de sa surface. Soit dV un élément de volume de la source. L'intensité émise par dV est :

$$I_s dV$$

et si R est la distance de dV à P, Σ la section efficace totale d'absorption de la source, l'intensité du rayonnement due en P à dV est :

$$dI_s = I_s \cdot dV \cdot e^{-\Sigma R} \cdot \frac{1}{4\pi R^2}$$

en négligeant le rayonnement diffusé.

Par conséquent, l'intensité superficielle de rayonnement due à tout le volume est :

$$I = \int_{(v)} dI_s = \frac{I_s}{2\Sigma}.$$

Pour des flux isotopes : $I = \frac{I_s}{\Sigma}.$

La pile E. L. 2 de Saclay fonctionne en général à 2 000 kW. Il s'y produit donc :

$$3,1 \times 10^{10} \times 2 \cdot 10^6 = 6,2 \cdot 10^{16} \text{ fissions par seconde.}$$

Le diamètre de la cuve est 2 m et la hauteur d'eau lourde 2 m environ. Soit un volume de 6,28 m³. Assimilons-la à un réacteur homogène. L'intensité spécifique de fissions est :

$$\frac{6,2 \cdot 10^{16}}{6,28 \cdot 10^6} \sim 10^{10} \text{ fissions par centimètre cube et par seconde.}$$

a) *Cas des neutrons rapides.* — L'intensité spécifique est donc $2,5 \cdot 10^{10}$.

Pour l'eau lourde $\frac{1}{\Sigma} = 9$ cm.

L'intensité spécifique superficielle au bord de la cuve est donc :

$$I_s = 2,5 \cdot 10^{10} \times 9 = 2,25 \cdot 10^{11}.$$

b) *Cas des photons γ .* — L'intensité spécifique correspondrait à $1,4 \cdot 10^{11}$ photons de 1,2 MeV. Pour cette énergie, la section efficace d'absorption massique est environ :

$$\frac{\Sigma}{\rho} = 0,05 \text{ cm}^2/\text{g},$$

ρ étant la masse spécifique moyenne eau-lourde-uranium.

La pile contient 3 tonnes d'uranium. D'où $\rho = 1,47$, et :

$$\Sigma = 0,074 \text{ cm}^{-1}.$$

L'intensité superficielle de la cuve en rayonnement est donc :

$$I_{\gamma} = \frac{1,4 \cdot 10^{11}}{0,074} = 1,9 \cdot 10^{12}.$$

Par conséquent, si l'on irradie des échantillons dans un canal sans convertisseur, le rapport du nombre des défauts formés par le rayonnement γ par rapport aux défauts dus aux neutrons rapides est, en se référant au résultat de Thomson et Holmès :

$$\frac{n_{\gamma}}{n_n} = \frac{1}{80} \cdot \frac{1,9 \cdot 10^{12}}{2,25 \cdot 10^{11}} \simeq 0,09.$$

Donc :

$$\frac{n_{\gamma}}{n_n} \simeq \frac{9}{100}.$$

Si l'on utilise un convertisseur, ce sont les fissions produites à l'intérieur de celui-ci qui fourniront la plus grande partie des rayonnements γ ou neutroniques. Le rapport des flux sera :

$$\frac{\varphi_{\gamma}}{\varphi_n} \simeq \frac{14}{2,5} = 5,6$$

d'où :

$$\frac{n_{\gamma}}{n_n} = \frac{1}{80} \cdot 5,6 = 0,07 \quad \frac{n_{\gamma}}{n_n} \simeq \frac{7}{100}.$$

Dans les deux cas, l'effet des γ est donc négligeable devant celui des neutrons rapides, dans un bombardement en pile.

Action de la radioactivité acquise par l'échantillon. — Les neutrons dont l'énergie cinétique est inférieure à l'énergie de seuil peuvent également contribuer à la formation de défauts de réseau de façon indirecte, du fait des radioactivités provenant de leurs captures.

Le nombre de défauts formés est naturellement fonction des sections efficaces de capture d'une part, et d'autre part, des caractéristiques de la radioactivité induite : nature, période, énergie.

Les sections efficaces correspondant à ces captures obéissent à la loi de Breit-Wigner que l'on peut écrire :

$$\sigma(E) = \frac{\sigma_R}{1 + \left[\frac{2(E - E_R)^2}{\Gamma^2} \right]}$$

où E_R est l'énergie qui correspondrait à la résonance exacte avec un niveau nucléaire,

E est l'énergie du neutron incident,

σ_R est la section efficace maximum correspondant à $E = E_R$,

Γ est la largeur du niveau de résonance.

Pour les énergies moyennes de neutrons, voisines de E_R , on a des sections efficaces d'absorption très élevées.

Pour les neutrons de très basse énergie, on montre que les sections efficaces sont proportionnelles à $1/v$ ⁽¹⁾, et par conséquent deviennent très importantes.

Comme les flux thermiques dans les piles sont très importants également, les activations seront extrêmement fortes, et il convient de se demander dans quelle mesure les défauts provoqués par la radioactivité propre de l'échantillon sont réellement négligeables par rapport aux défauts produits par les neutrons rapides.

Un cas particulier que l'on n'examine pas ici est celui de la radioactivité α . Son efficacité est indubitable. Mais les corps qui donnent lieu à cette radioactivité avec une section efficace d'absorption assez importante pour que la réaction soit utilisable, sont très rares.

Les radioactivités artificielles β et γ sont, au contraire, extrêmement fréquentes.

On voit que si N_r atomes d'un isotope donné sont soumis à un flux isotrope de neutrons polycinétiques, et si on appelle σ_a la section efficace d'activation moyenne de l'isotope considéré, pour la répartition spectrale du flux neutronique employé, le nombre d'atomes activés au bout d'un temps d'irradiation t est :

$$N = \varphi \sigma_a \cdot N_r \cdot \mathcal{G}(1 - e^{-t/\mathcal{G}})$$

où $\mathcal{G}$ est la période des atomes activés.

Le nombre de désintégrations par seconde, ou intensité radioactive est, au temps t :

$$I = \varphi \cdot \sigma_a \cdot N_r \cdot (1 - e^{-t/\mathcal{G}}).$$

Il s'agit de comparer les effets élastiques du flux de neutrons rapides φ , avec les effets de cette radioactivité, c'est-à-dire de φ . Pour avoir un ordre de grandeur, avant de considérer des cas particuliers nous suppo-

(1) v est la vitesse du neutron.

serons que les énergies E_p des rayonnements γ et β émis sont voisins de 1 MeV.

Comme φ et φ_r sont les flux isotropes qui traversent une sphère de 1 cm² de section diamétrale par unité de temps, nous allons considérer le nombre I_s de désintégrations qui se produisent dans le même temps, dans la même sphère (de volume $\nu = \frac{4}{3} \frac{1}{\sqrt{\pi}}$ cm³), soit :

$$K = \frac{\text{efficacité d'une « particule » émise } (\gamma \text{ ou } \beta)}{\text{efficacité moyenne d'un neutron rapide}} = \frac{n_p}{n_n}$$

en admettant toujours que les dégâts sont proportionnels au flux d'énergie et appelant R le rapport du nombre des défauts produits :

$$R = \frac{I_s \cdot E_p}{\varphi_r \cdot E} = K, \frac{\varphi}{\varphi_r} \cdot \sigma_a \cdot 10^{-24} \cdot 6,02 \cdot 10^{23} \cdot \frac{\rho \nu}{M}$$

où E est l'énergie moyenne d'un neutron rapide, de l'ordre de 1 MeV,

σ_a est maintenant exprimé en barns,

ρ est la masse spécifique du corps étudié,

M sa masse atomique,

$$\nu = \frac{4}{3} \frac{1}{\sqrt{\pi}}.$$

E_p et E sont exprimés en MeV.

Pour les métaux considérés : $\frac{\rho \nu}{M} \simeq 10^{-1}$, par conséquent :

$$\frac{I_s \cdot E_p}{\varphi_r \cdot E} \simeq 10^{-1} K \cdot \sigma_a \cdot \frac{\varphi}{\varphi_r} (1 - e^{-t/\tau}).$$

σ_a est donné par les tables ainsi que τ . Nous connaissons $\frac{\varphi}{\varphi_r}$ de façon approchée.

K pour les rayons γ sera pris égal à $\frac{1}{80}$ d'après Thomson et Holmes (64). Pour les électrons, remarquons que les énergies de rayonnements β émis sont en général comprises entre 0,4 et 1,2 MeV.

Corbett et ses collaborateurs (11) ont étudié de façon précise l'efficacité des électrons d'énergie comprise entre 0,4 et 1,37 MeV pour former des défauts dans le cuivre. Ils trouvent qu'un électron/cm² de 1 MeV à 4° K provoque une augmentation de résistivité de $6,40 \cdot 10^{-27} \Omega \text{ cm}$.

Irradiant du cuivre à 18° K avec d'autres métaux dans la pile d'Oakridge, Blewitt et ses collaborateurs (2) (3) montrent que la modification de résistivité ne dépend pas de la pureté ou de l'état d'écrouissage et qu'un neutron rapide par centimètre carré provoque une augmentation de résistivité de : $13 \cdot 10^{-27} \Omega \text{ cm}$. On a donc : $K = \frac{1}{2}$ pour une radioactivité β de 1 MeV. Considérons deux cas extrêmes :

a) *La période est brève* de l'ordre de quelques minutes à 1 heure. On a très rapidement saturation :

$$R = \frac{I_r \cdot E_p}{\varphi_r \cdot E} \simeq 10^{-1} \cdot \sigma_a \cdot K \cdot \frac{\varphi}{\varphi_r}.$$

σ_a varie entre 1 et 100 (et peut atteindre 1 000).

Cas des photons γ . — Hors convertisseur $\frac{\varphi}{\varphi_r} = 25$, et dans le cas d'une radioactivité γ , ce rapport est égal à :

$$R = \frac{25\sigma_a}{800}.$$

Pour σ_a faible (par exemple $\sigma_a = 1$), $\rho \simeq 3 \cdot 10^{-2}$ peut être négligé.

Mais pour une valeur moyenne de $\sigma_a = 10$, $\rho \simeq 0,3$: une très grande partie des dégâts (ici, le tiers) est due à la radioactivité propre de l'échantillon irradié.

— Dans le convertisseur $\frac{\varphi}{\varphi_r} \simeq 1$ et $R = 10^{-1}\sigma_a$, $R = \frac{\sigma_a}{800}$.

L'activité de l'échantillon n'aura besoin d'être considérée que pour une section efficace exceptionnellement importante : $\sigma_a \simeq 10^3$ barns. Ce qui est extrêmement rare.

Cas d'une radioactivité β . — Hors du convertisseur :

$$\frac{\varphi}{\varphi_r} = 25 \quad K = \frac{1}{2} \quad R = 10^{-1}\sigma_a \cdot \frac{1}{2} \cdot 25 \simeq 1,25\sigma_a.$$

L'action des électrons émis par l'échantillon sera toujours importante par rapport à celle des neutrons rapides.

— Dans le convertisseur :

$$\frac{\varphi}{\varphi_r} \simeq 1 \quad K = \frac{1}{2} \quad R = 10^{-1}\sigma_a \cdot \frac{1}{2} \cdot 1 = \frac{\sigma_a}{20}.$$

La radioactivité n'entre pas en ligne de compte si la section efficace d'absorption est faible.

b) *La période est importante par rapport au temps d'irradiation* : $t \leq \tau$.

— Les temps d'irradiation étant de l'ordre de 6 à 12 jours, c'est le cas des isotopes dont la période est de l'ordre du mois. On trouve de la même façon que la radioactivité γ est toujours négligeable et la radioactivité β est négligeable pour des irradiations effectuées à l'intérieur d'un convertisseur. Hors convertisseur, la radioactivité β peut produire environ le dixième des défauts produits par les neutrons rapides en prenant $\sigma = 10$. On peut donc négliger l'action des rayonnements β si la section efficace n'est pas trop importante.

Il convient de remarquer que ces comparaisons sont basées sur des résultats obtenus pour le cuivre. Dans le cas de corps de numéros ato-

miques très différents de celui du cuivre, il serait nécessaire de tenir compte de plus, des variations relatives des sections efficaces de déplacement.

Dispositif d'irradiation et de mesures.

Le dispositif est destiné à irradier dans une pile atomique des corps solides à des températures voisines de celle de l'azote liquide. Il est placé dans un petit canal horizontal de la pile E. L. 2, dans le convertisseur précédemment décrit. L'intérieur du convertisseur est de forme

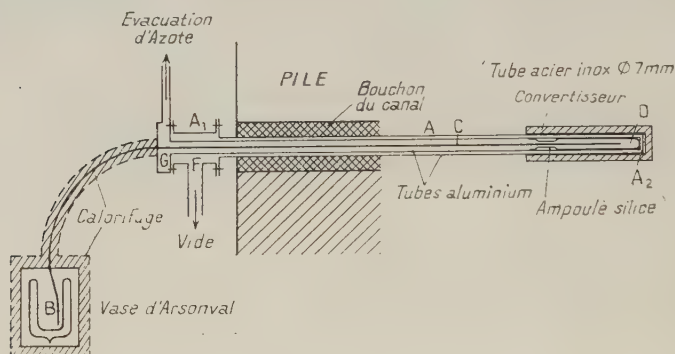


Fig. 5.

cylindrique, fermé à l'une de ses extrémités, du côté de la cuve d'eau lourde. Son volume utilisable a une longueur de 260 mm et un diamètre de 40 mm. La figure 5 représente l'ensemble du dispositif d'irradiation. La chaleur dégagée par le convertisseur, la petitesse des dimensions de l'enceinte expérimentale disponible et surtout la disposition horizontale du canal sont autant de conditions défavorables à la réalisation d'un appareil possédant des caractéristiques élevées. Par suite, j'ai cherché avant tout à obtenir un fonctionnement sûr pour des caractéristiques comparables — sans plus — à celles d'installations similaires déjà réalisées à l'étranger, en particulier aux dispositifs de McReynolds (42) à Brookhaven et de Childs (5) à Harwell. Dans ces deux dispositifs, on alimente périodiquement en azote liquide une enceinte thermiquement isolée. La température y remonte à -150°C environ de façon périodique. Cette remontée de température a l'avantage d'éliminer tout risque qui pouvait résulter de l'enrichissement de l'azote en oxygène. L'emploi de toute pompe de circulation ou de mécanismes délicats a été évité.

L'appareil qui a été réalisé à Saclay comprend trois parties :

- un dispositif d'irradiation,
- un dispositif de régulation de températures,
- un dispositif de mesures de résistances électriques.

Description du dispositif d'irradiation — Un vase de Dewar métallique (A) sert à isoler thermiquement l'ensemble du système. Il a 3,8 m de longueur et 29 mm de diamètre extérieur ; il plonge dans le convertisseur en (A₂) et émerge de la face de la pile en (A₁). A proximité de la sortie du canal se trouve un second vase de Dewar (B) en pyrex contenant de l'azote liquide qu'une surpression permet d'envoyer à

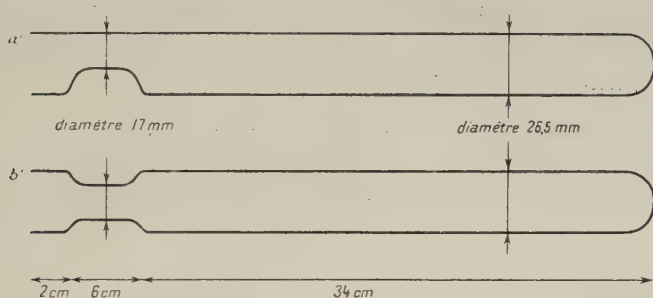


Fig. 6.

l'aide d'une conduite (C) dans une ampoule en silice fondue (fig. 6) placée en D et qui contient les échantillons.

Le vase (A) est formé de deux tubes métalliques concentriques fermés en A₂ et réunis par une pièce tubulaire A₁ qui permet de faire le vide entre les deux. La pression mesurée au niveau F est de l'ordre de 10^{-5} mm de mercure.

Les échantillons sont placés dans des ampoules de silice (fig. 6). L'azote y arrive par un tube d'acier inoxydable de 7 mm de diamètre et de 0,2 mm d'épaisseur calorifugé par du Klégécell revêtu d'une feuille de polythène entre l'enceinte à vide et l'extrémité G de A.

Le vase de Dewar (B), de 4 litres de capacité, est placé à l'intérieur d'un récipient métallique étanche. Une vanne électromagnétique commandée par un régulateur permet d'y établir une surpression pour envoyer l'azote liquide de (B) dans l'ampoule de silice. Deux vannes placées en parallèle permettent l'élimination rapide de toute surpression. Une soupape de sûreté tarée à 300 g/cm² permet d'éviter toute surpression accidentelle dangereuse. Un manomètre à mercure à trois contacts, auquel est transmise la pression hydrostatique du fond de (B)

permet de maintenir le niveau d'azote constant dans le vase (B), en provoquant le remplissage dès que le circuit des deux premiers contacts est coupé. Afin d'augmenter la sécurité du fonctionnement, il a été prévu deux circuits parallèles d'alimentation. Deux bouteilles d'azote liquide de grande capacité peuvent y être branchées, une seule étant en service à la fois. Si le niveau d'azote s'abaisse dans (B) de 10 cm environ, la coupure du circuit des deux derniers contacts assure la mise en service de la seconde bouteille. J'ai employé, en général, une bouteille à azote liquide de 100 litres avec éventuellement une bouteille de secours de 25 litres. L'azote qui a circulé dans A est capté en G et envoyé dans la cheminée générale de la pile.

Description du dispositif de régulation de température. — Il comporte deux parties :

1° Un système de commandes comprenant :

- un régulateur de température à thermocouple qui commande la « réfrigération » de l'ampoule d'irradiation ;
- un régulateur de niveau qui commande l' « approvisionnement » en azote liquide du vase de Dewar en pyrex ;
- un jeu de relais électromagnétiques dépendant de ces régulateurs.

2° Un système d'alimentation en azote liquide, tant pour la « réfrigération » que pour « l'approvisionnement », et qui comprend :

- deux circuits de gaz comprimés commandés par des vannes électromagnétiques soumises aux relais ;
- des canalisations d'azote liquide munies de clapets.

Fonctionnement de l'ensemble. — Le régulateur de température est le pyromètre potentiomètre R. I. A. 611 fabriqué par la société MECI, à thermocouple cuivre-constantan. L'échelle de température couverte par ce régulateur va de -200°C à $+100^{\circ}\text{C}$. Ce régulateur de température est du type « tout ou rien ». Il commande, de façon discontinue, l'envoi de liquide froid dans l'enceinte à contrôler. Du fait que les conditions de fonctionnement sont constantes, on obtient des variations périodiques de la température avec le temps. La figure 7 montre la façon dont varie la température en fonction du temps, au cours d'un essai, hors pile avec un réglage donné de l'appareil. T_R représente la température de réglage, T_N la température d'ébullition de l'azote. Entre O et A, l'azote liquide s'évapore et la température est constante. Puis la température s'élève. En B, le régulateur enclenche l'injection d'azote. La température continue cependant à croître jusqu'en C avant que l'azote arrive dans l'ampoule d'irradiation. A partir de ce moment, la

température s'abaisse très rapidement. L'injection d'azote est arrêtée en D. L'azote s'évapore entre E et F et le cycle recommence.

En pile, le réacteur marchant à 2 000 kW, avec les remplissages de l'ampoule de silice couramment réalisés, AE restait le même mais EA' était réduit de moitié, et la consommation était approximativement doublée. Il importe de noter que l'élévation de la température AC est rapide. Par conséquent pour avoir une régulation de température bien régulière, il est nécessaire que le temps de réponse représenté par l'abscisse de BC soit constant. Toutes les autres conditions restent invariables au cours d'une irradiation ; le seul facteur qui importe est la pression qui envoie de l'azote liquide du vase de Dewar dans l'ampoule

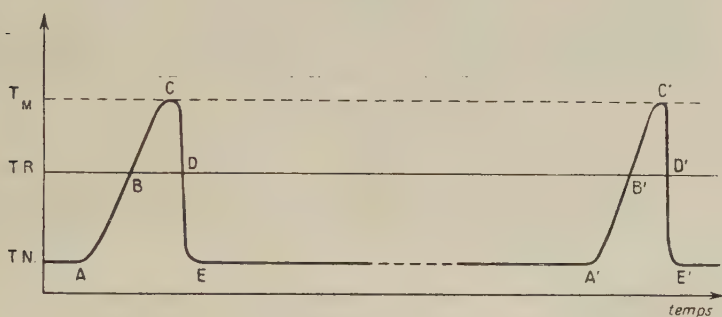


Fig. 7.

d'irradiation. Cette pression peut être contrôlée par un manomètre de précision. Une soupape de sûreté, à gros débit, tarée à 300 g/cm² le garantit contre une élévation de pression accidentelle et brutale éventuelle.

CARACTÉRISTIQUES DES CONDITIONS D'IRRADIATION. — Un facteur très important à considérer dans une telle installation est l'homogénéité des conditions d'irradiations, principalement celle des flux et celle des températures. La figure 8 montre la répartition du flux de neutrons rapides dans le convertisseur. On voit que si l'homogénéité est sensiblement meilleure que dans un convertisseur de type usuel, elle est encore loin d'être parfaite. Les intensités neutroniques varient d'un facteur 2 environ d'une extrémité utilisable à l'autre dans l'ampoule de silice. Il en est de même pour le flux thermique et vraisemblablement, à peu près de même pour le flux de rayons γ .

D'autre part, comme le refroidissement des échantillons est dû, à partir d'un certain moment au gaz évaporé, il est normal de s'attendre à ce que les températures soient différentes sur une même verticale

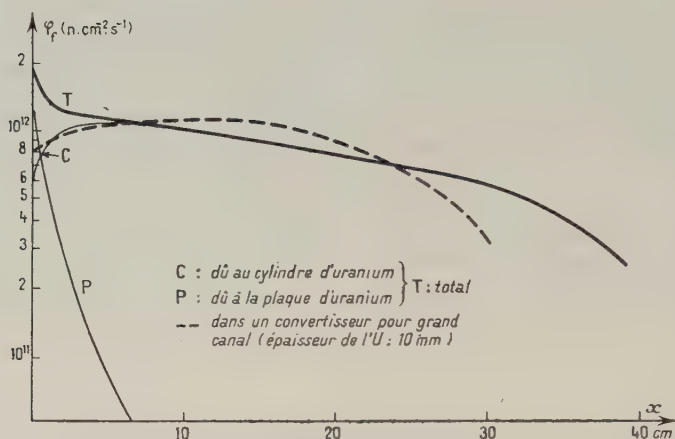
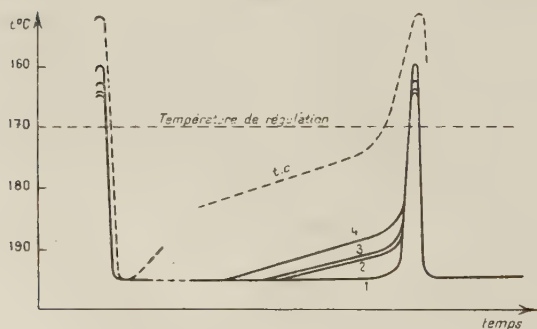
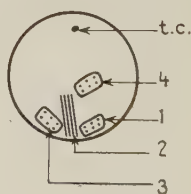


Fig. 8.

dans l'ampoule de silice. La figure 9 *a* représente, par exemple, pour un cycle de régulation, les variations de températures de quatre échantillons différents, non reliés entre eux, avec le temps. Les températures étaient indiquées par des thermocouples soudés aux échantillons étudiés qui étaient disposés dans une même section transversale du tube de silice, comme l'indique la figure 9 *b*. Les échantillons sont numérotés (1, 2, 3, 4) de la même façon que les courbes correspondantes. Les points de température maximum sont indiqués par M_1 , M_2 , M_3 ou M_4 . Le thermocouple qui servait à la régulation était placé en un point marqué *t. c.*, au-dessus des échantillons, et la courbe de variation de sa température est tracée en traits interrompus.

Pour réduire dans une certaine mesure, les inconvénients inhérents

Fig. 9 *a*.Fig. 9 *b*.

aux inhomogénéités de flux je n'ai irradié que des échantillons de forme ramassée (de longueur, 5 à 7 cm) placés dans le fond du convertisseur, dans la région de flux sensiblement constant.

Les variations longitudinales de la température représentées figure 10 sont très faibles et ne posent pas de problème, du fait de conductibilité thermique des métaux, car les échantillons sont placés longitudinalement dans le tube. Les variations verticales de température sont plus difficiles à supprimer, car les échantillons, placés horizontalement, sont isolés les uns des autres électriquement et par conséquent

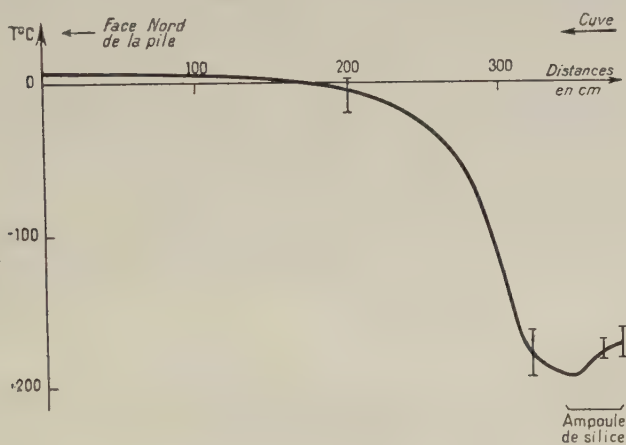


Fig. 10.

thermiquement. Les différences extrêmes de température ne dépassent cependant pas une quinzaine de degrés celsius dans les plus mauvaises conditions.

CONSOMMATION D'AZOTE LIQUIDE. — La consommation d'azote liquide est naturellement fonction de la puissance de fonctionnement de la pile, de la température que l'on désire ne pas dépasser et de la masse de matière irradiée.

Hors pile, la consommation est 1,2 litre d'azote liquide à l'heure, pour une température maximum de -170°C . Pendant une irradiation, l'ampoule contient un faisceau de conducteurs de cuivre et de thermocouples dont la masse totale est d'environ 200 g. Pour la même température maximum que ci-dessus la consommation est d'environ 2 litres par heure quand la pile fonctionne à une puissance de 2 000 kW. Elle est de 4 litres par heure si l'on veut maintenir la température constante (pour des échantillons assez petits pour être rassemblés à la partie inférieure du tube de silice), et le thermocouple de régulation doit alors

être placé beaucoup plus haut que les échantillons puisque l'on utilise un système « tout ou rien ». Lorsque l'on arrête la pompe secondaire, la consommation devient deux fois plus importante.

Dispositif de mesure de résistivité. — Il devait permettre de mesurer la résistance électrique des échantillons au cours de l'irradiation, la pile étant en marche. Lors de la mesure, les échantillons à étudier devaient être à la température de l'azote liquide et leurs résistances électriques étaient comprises entre 1 et 0,01 ohm. La longueur du canal de la pile jointe au fait que l'appareil de mesure devait se trouver à une certaine distance (2 m environ) de la sortie du canal, imposaient des

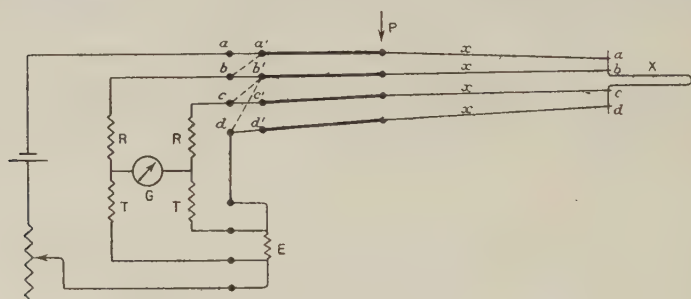


Fig. 11.

conducteurs d'une longueur totale de 6 m environ dont la résistance n'était, par conséquent, pas négligeable. Dans ces conditions une technique de pont doit permettre d'effectuer ces mesures avec une bonne précision (D. K. C. McDonald (41)) à condition de pouvoir évaluer la résistance des conducteurs. Un pont de Thomson à quatre décades fut donc adopté. Il permettait de faire des mesures en commettant une erreur relative inférieure à $5 \cdot 10^{-4}$, ce qui paraissait suffisant car il n'était pas possible de contrôler la pression au-dessus de l'azote liquide pendant les mesures, et par suite, la température d'ébullition pouvait varier légèrement.

Les résistances parasites dues aux conducteurs présentaient les particularités d'être égales et d'être du même ordre de grandeur que les résistances à mesurer. Il m'a donc paru simple de les mesurer directement. En effet, les échantillons à étudier, de résistance X , sont munis de prises de tension et de courant identiques de 4,50 m de longueur, formés des fils isolés d'un même câble polyfilaire (fig. 11) soudés par point à l'échantillon en a, b, c, d . Ces conducteurs d'un diamètre de $7/10$ de millimètre sont raccordés, à la sortie de la pile, par l'intermédiaire d'une prise multibroches P à des conducteurs de plus grosse section qui

aboutissent à un tableau en a', b', c', d' . A proximité du tableau est placé le pont représenté en K, dont les bornes a_0, b_0, c_0, d_0 peuvent être reliées aux bornes a', b', c', d' , du tableau par des conducteurs souples de grosse section et de résistance électrique négligeable.

Pour effectuer la mesure, la régulation était arrêtée, et l'on injectait de l'azote liquide de façon continue jusqu'à ce que la température soit pratiquement égale dans toute la partie de l'appareil située dans le canal de la pile (partie appelée A, fig. 5). Lorsque la température y est stabilisée, on effectue la première mesure en reliant a_0 à a' , b_0 à a' , c_0 et d_0 à b' . A l'équilibre du pont on a :

$$\frac{2x}{E} = \frac{R_1}{T}$$

en appelant R_1 et T les résistances des branches du pont, x la résistance totale d'un conducteur, E la valeur de la résistance étalon.

On relie alors a à a' , b à b' , c à c' , d à d' ; à l'équilibre du pont on a :

$$\frac{X}{E} = \frac{R_1 + x}{T},$$

d'où X .

Dans la pratique on irradiait plusieurs résistances X_1, X_2, X_3, X_4 à la fois. On effectuait une mesure de la résistance des conducteurs suivie de mesures de toutes les résistances, l'une après l'autre, puis à nouveau une mesure de la résistance des conducteurs pour vérifier qu'elle n'avait pas varié dans de grandes proportions. Les résistances à mesurer étant approximativement connues, la durée de ces mesures n'excédait pas quelques minutes :

$$\frac{\Delta X}{X} = \frac{\Delta(x+R_2)}{X_2+x} \simeq \frac{\Delta x}{R_2} + \frac{\Delta R_2}{R_2}$$

car x est petit devant R_2 .

En pratique :

$$\begin{aligned} x &\simeq 0,1 \, \Omega \\ R_2 &\simeq 900 \, \Omega. \end{aligned}$$

Donc pour x , deux chiffres sont plus que suffisants, et les mesures dont il est l'objet peuvent être faites très rapidement. De nombreuses mesures ont d'ailleurs permis de vérifier que les variations de résistance électrique d'une mesure à l'autre, qu'elles soient dues aux effets du bombardement neutronique ou à d'autres causes, une répartition un peu différente de la température le long du canal, par exemple, sont trop faibles pour pouvoir introduire une erreur importante dans les mesures si on les négligeait.

Il n'en serait pas de même si l'on recherchait une précision supérieure à la précision actuelle de l'appareil.

Utilisation de l'appareil pour des expériences de restauration. — Pour effectuer des expériences de restauration de résistivité hors de la pile, il eût fallu résoudre des problèmes de transport, stockage à basse température et manipulation de matériaux radioactifs dans un dispositif particulièrement étudié à cet effet. Pour des raisons d'ordre pratique, il n'était pas possible, momentanément du moins, d'en envisager l'étude et la réalisation. Il fallait donc essayer d'effectuer les mesures à l'intérieur du dispositif d'irradiation employé.

Des recuits isochromes ont effectivement été réalisés dans cet appareil pendant des périodes d'arrêt de la pile, le régulateur étant, entre deux mesures, réglé sur la température de recuit désirée pendant un temps donné.

CHAPITRE II

Expériences et discussion des résultats.

Des échantillons de niobium, molybdène, palladium, tantale, tungstène et platine ont été irradiés dans l'appareil qui vient d'être décrit. Les modifications de la résistivité électrique étaient mesurées à intervalles de 24 heures.

Le but recherché était de déceler le rôle éventuel de la structure électronique du métal irradié dans les augmentations globales de résistivité pour chaque métal.

J'expose dans une première partie les résultats obtenus concernant le rôle de la structure électronique des métaux dans les augmentations de résistivité mesurées.

Dans une seconde partie, je résume les observations faites sur la régulation de la pile E. L. 2.

Irradiation de métaux de transition.

Lorsqu'on passe en revue les nombreuses expériences d'irradiation des métaux effectuées depuis quelques années (voir, par exemple, Seitz et Köhler (57)), et tout particulièrement les études basées sur les mesures de résistivité électrique, on peut distinguer, selon le but qu'elles se proposent, deux catégories de travaux :

Dans la première catégorie, les expériences ont pour objet l'étude d'un seul métal : le cuivre. Elles visent à la vérification des hypothèses théoriques sur la nature des défauts dans les solides et à l'examen des problèmes qu'ils posent (Harrison et Seitz (24), Sampson et al. (55),

Corbett et al. (11)). Les irradiations en pile se prêtent fort bien à l'évaluation du nombre de défauts formés, et par suite, de la résistivité induite par défaut dans le métal (cf. Seitz et Kœhler (57), p. 408-410) ainsi qu'aux études de restauration de la résistivité avec la température (Blewitt, 1957 (2) (3)). Lors de l'étude d'autres métaux, on admettra toujours plus ou moins explicitement que les processus physiques qui se produisent sont les mêmes, aux énergies mises en jeu près, que dans le cas du cuivre.

Dans la seconde catégorie d'expériences, on peut ranger toutes les études concernant les autres métaux. Certaines procèdent de préoccupations de technologie nucléaire (C. J. Meehan (45)). D'autres ont pour but de comparer entre eux les comportements de métaux différents. Il m'a paru particulièrement intéressant de considérer ces dernières tant pour les hypothèses qu'elles confirment que pour les problèmes nouveaux qu'elles posent. Les travaux de ce type sont actuellement peu nombreux.

Marx, Cooper et Henderson (44) irradièrent des échantillons de cuivre, d'argent et d'or ainsi que du nickel et du tantale avec des deutons de 12 MeV dans un dispositif refroidi par de l'azote liquide. L'expérience mit en évidence une importante restauration à la température de l'irradiation (-140°C). Elle fut reprise par Cooper, Kœhler, Marx (19) et (10) dans un dispositif refroidi par de l'hélium liquide, pour les trois premiers métaux. L'analogie de leur structure électronique et la quasi-égalité de leurs températures de fusion, faisaient attendre un comportement à peu près identique des défauts produits par l'irradiation, tandis que les résistivités acquises devaient croître proportionnellement au carré des numéros atomiques respectifs (Seitz (56)). Ce dernier point fut vérifié. Cependant si les expériences isochrones de restauration montrèrent qu'il était possible de distinguer trois étapes de restauration, elles montrèrent aussi que les importances respectives des étapes extrêmes sont inversées, pour l'or et le cuivre, les valeurs obtenues pour l'argent restant intermédiaires. En particulier, il ne se produit pas de restauration à 40°K pour l'or, alors que ce processus est très important pour le cuivre. Ces faits restent actuellement inexpliqués (Sosin et Meehan (61)).

Wruck et Wert (73) comparèrent les comportements du fer, du cobalt et du nickel bombardés à -150° par des deutons de 12 MeV. Ces trois métaux ont leurs numéros atomiques successifs, 26, 27, 28 et des températures de fusion très voisines. Les sections efficaces qui conditionnent les déplacements des atomes sont probablement très voisines, et les énergies de seuil nécessaires aux déplacements du même ordre de grandeur. Cependant, les expériences mirent en évidence une variation de résistivité du fer, trois fois plus grande que celle du cobalt et cinq fois plus grande que celle du nickel. Plusieurs facteurs, tels que

la structure électronique, la présence d'impuretés ou la structure cristalline, pouvaient intervenir simultanément ou séparément pour expliquer ces différences. Il ne fut pas possible de tirer une conclusion nette de cette expérience.

Exposé du problème. — Au cours d'une série d'irradiations effectuées dans la pile de Saclay, j'ai irradié des métaux de transition de la deuxième et de la troisième période de la classification périodique — niobium, molybdène, palladium, tantale, tungstène, platine — dans

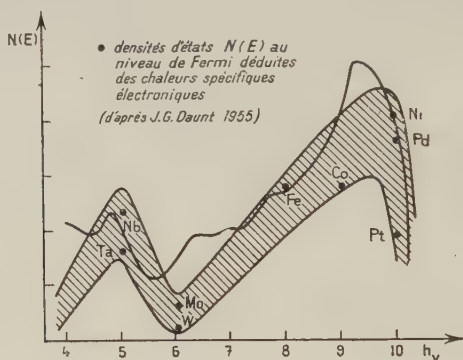


Fig. 12.

des conditions qui permettent la comparaison des variations de résistivité mesurées pour chacun d'eux. Comme Wruck et Wert, je voulais voir si certains facteurs déterminaient de façon prédominante les augmentations de résistivité dues à l'irradiation et tout particulièrement à la structure électronique. Celle-ci doit être parmi les mieux connues car ces métaux, qui sont tous paramagnétiques, ont été l'objet de mesures et d'études nombreuses de susceptibilité magnétique (Stoner (62), Kriessman (37), Hoare et Matthews (25)) et de chaleurs spécifiques électroniques (Woolcott (72), Daunt, (12)). De plus, les études effectuées entre 10° K et 300° K, par Kemp et al. (29) et (30), White and Woods ((71) a, b et c) mirent en évidence une certaine analogie de propriétés électriques entre ces métaux. On sait que leur résistivité est expliquée par des transitions électroniques, des bandes s vers les bandes d à température ordinaire (Mott and Jones (46)). Elle est encore due à ce même phénomène jusqu'à des températures de l'ordre de 20° à 30° K (White (70)). Enfin, leurs températures de fusion relativement élevées faisaient espérer que les défauts formés seraient, en grande partie, conservés à la température maximum de l'irradiation (— 160° C).

Préparation des échantillons. — Les échantillons se présentaient sous forme de fils sauf le palladium qui était découpé à partir d'une plaque de 0,1 mm d'épaisseur. Le tantale et le tungstène avaient été fournis par Heraus, le molybdène par Philipps, le niobium par la Fansteel Corporation, le palladium par Caplain Saint-André, le platine par Johnson Matthey et Cie.

Le tableau indique les teneurs en impuretés donnés par les fournisseurs :

Tantale	{	Fe	0,02 à 0,03 p. 100
		Si	0,04 p. 100
Tungstène	{	Fe	0,02 à 0,006 p. 100
		Si	0,002 à 0,004 p. 100
Molybdène	{	Fe	0,004 à 0,006 p. 100
		Si	0,002 à 0,004 p. 100
		oxygène . .	0,002 p. 100
		hydrogène .	0,001 p. 100
Niobium	{	C	0,01 p. 100
		Fe	traces
		Ta	
		Zr	
Palladium	{	Cu	traces (Boudet-Desaix, n° 706 088)
		Ir	
Platine			99,999 p. 100 (Lab. Rep., n° 10 349).

Pour préparer les échantillons, les fils étaient protégés par une gaine bifilaire pour thermocouple de 15 cm de longueur et de 3 mm de diamètre, laquelle était brisée à peu près en son milieu ; l'ensemble était plié et ligaturé extérieurement par du fil de cuivre. Des prises de courant et de tension étaient soudées à une distance de 7 à 8 mm l'une de l'autre. Les conducteurs en cuivre étaient brasés ou soudés à l'étain à un petit fragment de fil de nickel de 0,5 mm de diamètre et d'environ 3 mm de longueur qui était à son tour soudé, par point, au fil à étudier.

Afin de permettre aux soudures de résister aux efforts relativement grands auxquels elles étaient soumises lors de l'introduction des échantillons dans l'ampoule de silice (dont le diamètre intérieur d'entrée n'était que 15 mm), elles subissaient un enrobage. Pour cela les soudures et l'extrémité libre des fils étaient munies d'un support de papier bristol, et le tout était alors recouvert d'une résine durcissante (aral-

dite). Les échantillons de palladium étaient découpés selon un ruban crénelé de 1 mm de largeur ; les créneaux avaient 6 mm de largeur et 30 mm de hauteur. La longueur totale du conducteur réalisé ainsi était 20 cm. Il était plié et isolé avec du mica de façon à se présenter sous la forme d'une plaquette de 1,5 mm d'épaisseur, 8 mm de largeur et 40 mm de longueur.

Résultats obtenus. — Il n'était possible d'irradier que trois ou quatre échantillons à la fois. Ceux-ci étaient placés au fond du dispositif, dans la portion où le flux de fission dû au convertisseur était le plus intense.

Afin de tenir compte des différences possibles dans les conditions d'irradiation, et principalement de la température, à l'intérieur de l'appareil, les échantillons étaient déplacés les uns par rapport aux autres d'une irradiation à la suivante.

Métal	Nb	No	Pd		Ta	W	Pt	
Numéro atomique.	41	42	46		73	74	78	
			écroui	recuit			écroui	recuit
Nombre d'échantillons irradiés	7	3	1	1	7	5	1	2
	0,393	1,11	0,253	0,366	0,264	1,07	0,196	0,318
	0,414	1,18			0,402			0,235
	0,370	1,75			0,462	1,08		
	0,382				0,57	1,56		
	0,486				0,415	1,23		
	0,437				0,497			
	0,465				0,28			
$100 \frac{\Delta R}{R} \text{ moyen}$								
$100 \frac{\Delta R}{R} \text{ moyenne générale}$.	0,42	1,35		0,37	0,41	1,24		0,27
$\Delta \rho \mu\Omega \text{ cm}$	1,6	1,5	1,07		2,1	1,35	1,06	

Dix irradiations furent effectuées, la plus longue de 300 heures, la plus courte de 42 heures (en moyenne 120 heures). Les mesures étaient distantes de 24 heures environ.

Pour les six métaux, 28 échantillons furent irradiés en tout. Le niobium et le tantale préalablement irradiés ensemble (Lucasson (40)) furent pris comme étalons et, à l'exception d'une seule irradiation consacrée au platine et au palladium, pour chaque irradiation le lot des échantillons en comprenait au moins un de niobium ou de tantale. Le tableau ci-dessus indique les variations de résistivité mesurées, ramenées

par simple moyenne à 24 heures pour chaque irradiation, et leur valeur moyenne pour la totalité des mesures.

Les variations du flux neutronique ainsi que les différences de température des échantillons suivant la position qu'ils occupent dans l'ampoule d'irradiation (chap. I) expliquent les écarts entre les chiffres du tableau pour un même métal.

Discussion des résultats. — Les résultats obtenus montrent une certaine périodicité. Ce fait donne à penser que la structure électronique des métaux doit effectivement jouer un rôle important dans la modification de résistivité provoquée par l'irradiation (voir fig. 2).

Il est intéressant de rapporter ici les résultats obtenus par Blewitt et ses collaborateurs ((3) qui irradièrent à des températures inférieures à 20° K une série de métaux, en particulier : platine et fer, cobalt, nickel, cuivre, zinc, qui se succèdent sur une même ligne de la classification périodique. Les variations de résistivité correspondant à une irradiation de 160 heures dans la pile d'Oakridge s'évaluent aisément d'après le diagramme de la figure 3, d'après Blewitt. Si l'on porte sur un graphique les variations totales de résistivité en ordonnée et les numéros atomiques des éléments irradiés en abscisse, on obtient la courbe reproduite figure 4. Elle suggère que la résistivité induite par les défauts de réseau dans un métal de transition pourrait dépendre de la structure électronique de celui-ci.

ÉVALUATION DU NOMBRE D'ATOMES DÉPLACÉS. — Pour rapporter la résistivité induite par 1 p. 100 d'atomes déplacés dans le réseau, il faudrait connaître leur nombre. Pour cela, essayons d'appliquer le calcul développé par Seitz et Kœhler (57) de façon à pouvoir comparer entre eux les résultats obtenus, dans mes expériences d'une part, et d'autre part dans les expériences de Blewitt et al. D'après Seitz et Kœhler, pour chaque neutron incident d'énergie E, qui frappe une surface de 1 cm², la probabilité pour qu'un atome de cette surface soit déplacé avec une énergie cinétique comprise entre T et T + dT est :

$$dP = \sigma \frac{dT}{T_m}$$

où σ est la section efficace de diffusion élastique totale des atomes bombardés.

T_m est l'énergie maximum que le neutron peut transférer à un atome.

On a :

$$T_m \simeq \frac{4E}{M}$$

où M est la masse atomique de l'atome ; et le nombre de déplacements secondaires produits par un atome primaire d'énergie T est :

$$\begin{cases} g\left(\frac{T}{E_s}\right) = 0,561 \left(1 + \frac{T}{E_s}\right) \\ \text{si : } \frac{T}{E_s} \geq 4 \end{cases}$$

où E_s est l'énergie de seuil pour déplacer un atome.

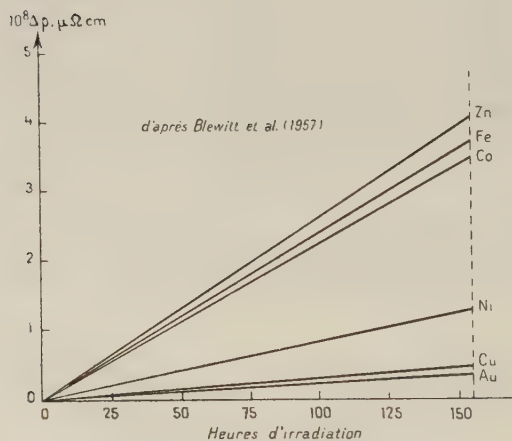


Fig. 13 a.

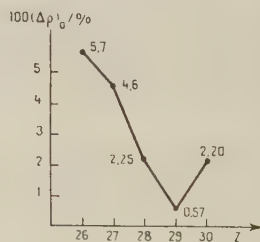
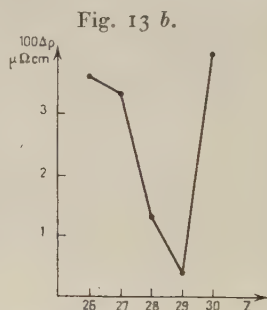


Fig. 13 c.

D'où la probabilité pour qu'un atome soit déplacé lorsque arrive un neutron d'énergie E :

$$G(E) = \sigma \int_{E_s}^{T_m} g\left(\frac{T}{E_s}\right) \frac{dT}{T_m}$$

$$G(E) = 0,561 \sigma \left[1 + \frac{T_m}{2E} - \frac{3E_s}{2T_m} \right].$$

On montre aisément qu'environ 95 p. 100 des atomes déplacés sont dus aux neutrons d'énergie supérieure à 0,2 MeV.

On peut donc légitimement négliger les neutrons d'énergie inférieure à 0,2 MeV. Comme E_d est inférieur à ou de l'ordre de 100 eV dans le cas des métaux étudiés ici, et que dans ces conditions T_m est de l'ordre de

1 000 eV au moins, on voit que $\frac{3}{2} \frac{E_s}{T_m}$ est négligeable devant $1 + \frac{T_m}{2E_s}$ et que la condition $T \geq 4E_s$ est satisfaite.

Donc :

$$G(E) = 0,561 \sigma \left[1 + \frac{T_m}{2E_s} \right]$$

et si l'irradiation dure un temps t , la proportion d'atomes déplacés sera :

$$f = t \int_{0,2}^{\infty} \varphi(E) G(E) dE.$$

Explicitons :

$$f = 0,561 t \int_{0,2}^{\infty} \varphi(E) \sigma(E) \left[1 + \frac{T_m}{2E_s} \right] dE.$$

a) L'examen d'un atlas de sections efficaces montre que la section efficace de diffusion totale varie peu dans l'intervalle d'énergie considéré. Il en est de même de la section efficace de diffusion élastique σ . On peut donc, comme Seitz et Kœhler (57) le font dans une estimation analogue, considérer σ comme constante, et prendre sa valeur donnée pour $E = 1$ MeV par Walt et Barshall (68). Dans le cas des irradiations effectuées dans un convertisseur, il y a une justification supplémentaire à cette approximation dans le fait que la courbe de répartition énergétique des neutrons de fission présente un maximum aigu pour $E = 1$ MeV.

Dans les cas particuliers du palladium et du platine, on ne trouve pas de valeurs de σ dans la littérature. J'ai pris alors arbitrairement des valeurs qui m'ont semblé raisonnables, me basant sur le fait, vérifié par Walt et Barshall, que les valeurs de σ varient lentement en fonction du numéro atomique.

On a donc :

$$f = 0,561 \cdot \sigma \cdot t \cdot \int_{0,2}^{\infty} \varphi(E) \left[1 + \frac{T_m}{2E_s} \right] dE.$$

b) Comme l'énergie la plus probable pour un neutron est de 1 MeV, la valeur la plus probable pour T_m est de l'ordre de :

$$\frac{4 \cdot 10^6}{2 \cdot 10^3} = 2 \cdot 10^3 \text{ eV}$$

pour les métaux les plus lourds, étudiés ici. On peut donc négliger 1 devant $\frac{T_m}{2E_s}$ et écrire, en explicitant :

$$T_m = \frac{4E}{M}$$

$$f = \frac{2 \times 0,561 \cdot \sigma \cdot t}{M \cdot E_s} \int_{0,2}^{\infty} E \cdot \varphi(E) dE,$$

ce qui justifie l'hypothèse faite *a priori* au chapitre premier, que la concentration des défauts produits est proportionnelle au flux d'énergie des neutrons.

c) Nous ne connaissons pas E_s en général. Essayons de l'évaluer :

La première estimation de l'énergie de déplacement d'un atome dans un réseau cristallin fut faite par Seitz (Seitz et Kœhler (57), p. 311). L'analogie entre le phénomène considéré et la sublimation conduisait à prendre E_s de l'ordre de grandeur de l'énergie de cohésion par atome, E_c , du corps considéré. Mais l'atome libéré par sublimation se trouve immédiatement dans le vide, tandis que pour se déplacer dans le réseau cristallin d'une position d'équilibre stable à une position métastable, un atome doit passer par des positions de « col », séparant des couples de proches voisins. Cette énergie du col, qui dépend, en particulier, du type de maille cristalline (cubique centré ou cubique à faces centrées), détermine le seuil d'activation E_s pour les déplacements. Un calcul de Huntington et Seitz (27), donne des valeurs satisfaisantes de E_s en exprimant l'énergie de répulsion entre ions voisins en fonction de la compressibilité K déterminée expérimentalement par Bridgman.

Il est donc naturel d'admettre que E_s est, en première approximation, inversement proportionnelle à la racine carrée du rapport $\frac{K}{E_c}$.

On connaît E_s , E_c et K pour le cuivre. Pour tous les métaux on connaît E_c et K . On peut donc en déduire, si les hypothèses envisagées sont exactes :

$$(E_s)_{\text{métal}} = (E_s)_{\text{cuivre}} \cdot \sqrt{\frac{K}{E_{c \text{ cuivre}}} \cdot \frac{E_c}{K_{\text{métal}}}}.$$

Dans le tableau de la page 472, j'ai porté les compressibilités K à température ordinaire, les énergies de cohésion E_c de chaque métal étudié (les valeurs de K et E_c ont été puisées dans Kittel (34), p. 99), et les énergies de seuil de déplacement qu'on peut en déduire en supposant que E_s est de 25 eV pour le cuivre.

d) Il suffit maintenant de déterminer la répartition énergétique du flux neutronique pour pouvoir calculer la proportion des atomes déplacés. Nous distinguerons deux cas : celui des irradiations effectuées à Saclay où l'on ne connaît qu'une valeur approchée du flux de fission, et celui des irradiations d'Oakridge où le flux neutronique est donné avec précision.

1^{er} CAS. — *Irradiations effectuées dans E. L. 2.* — Nous ne connaissons pas la répartition énergétique des neutrons, $\varphi(E)$. Mais dans le convertisseur de petit diamètre utilisé, on doit faire une erreur négligeable en admettant que l'on a un flux de fission pur. La répartition des neutrons en énergie est donnée par la formule semi-empirique de

Watt. Si Φ_f est le flux de fission total mesuré à l'emplacement des échantillons, on a :

$$\varphi(E)dE = \Phi_f \cdot \sqrt{\frac{2}{\pi e}} \cdot e^{-E} sh \sqrt{2E} \cdot dE.$$

L'énergie la plus probable est 1 MeV, ce qui est une justification supplémentaire de l'approximation faite sur la constance de σ et le choix de sa valeur.

D'autre part l'énergie moyenne est de l'ordre de 2 MeV.

$$\frac{\int_{0,2}^{\infty} E \varphi(E) dE}{\int_{0,2}^{\infty} \varphi(E) dE} \simeq 2 \Phi_f,$$

Par suite :

$$f = \frac{4 \times 0,561 \sigma}{M \cdot E_s} t \Phi_f$$

où E_s est exprimé en MeV.

Nous prendrons :

$$\Phi_f = 1,4 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{seconde pour } E = 2 \text{ MeV :}$$

d'où :

$$f \simeq 2,72 \cdot 10^{16} \frac{\sigma}{M \cdot E_s} \quad (1)$$

si $t = 24 \text{ heures} = 8,64 \cdot 10^4 \text{ secondes}$.

Les valeurs de la section efficace de diffusion sont données par Walt et Barshall (68), sauf pour le palladium et le platine. Dans le cas de ces deux métaux, j'ai attribué une valeur vraisemblable à σ .

Pour le niobium :

$$\sigma = 5,8 \cdot 10^{-24} \quad M = 93 \quad E_s = 42 \cdot 10^{-6} \quad \text{d'où } f = 0,39 \cdot 10^{-4}.$$

Pour le molybdène :

$$\sigma = 5,7 \cdot 10^{-24} \quad M = 96 \quad E_s = 49 \cdot 10^{-6} \quad \text{d'où } f = 0,32 \cdot 10^{-4}.$$

Pour le palladium :

$$\sigma = 5 \cdot 10^{-24} \quad M = 107 \quad E_s = 31 \cdot 10^{-6} \quad \text{d'où } f = 0,33 \cdot 10^{-4}.$$

Pour le tantale :

$$\sigma = 5,1 \cdot 10^{-24} \quad M = 181 \quad E_s = 46 \cdot 10^{-6} \quad \text{d'où } f = 0,16 \cdot 10^{-4}.$$

Pour le tungstène :

$$\sigma = 4,7 \cdot 10^{-24} \quad M = 184 \quad E_s = 59 \cdot 10^{-6} \quad \text{d'où } f = 0,11 \cdot 10^{-4}.$$

Pour le platine :

$$\sigma = 4,5 \cdot 10^{-24} \quad M = 195 \quad E_s = 43 \cdot 10^{-6} \quad \text{d'où } f = 0,12 \cdot 10^{-4}.$$

(1) E_s en MeV σ en barns.

Métal	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Pt	Nb	Mo	Pd	Ta	W	Pt	
Masse atomique	56	59	59	64	65	195	93	96	107	181	184	195	M
Compressibilité $\frac{1}{\nu} \frac{d\nu}{dp} \times 10^7$ cm ² /kg.	5,6	5,4	5,3	7,2	16,9	3,6	5,7	3,3	5,3	4,8	3,2	3,6	K
En. coh. kcal/mole	97	105	101	81	31	122	184	155	93	185	201	122	E _c
Énergie de déplacement E _s en eV	25	33	32	25	12	43	42	49	31	46	59	43	E _s
$\sigma \cdot 10^{24}$ cm ²	2,1	3,3	2,8	2,9	3,3	? (4,5)	5,8	5,7	? (5)	5,1	4,7	? (4,5)	10 ²⁴ cm ²
$f \cdot 10^4$	0,65	0,74	0,65	0,79	1,8	0,23	0,39	0,32	0,33	0,16	0,11	0,12	
		pour 160 heures								pour 24 heures			
($\Delta\rho$) $\mu \cdot 10^6$ ohms-cm p. 100	5,7	4,6	2,25	0,57	2,2	5	3,8	5	2,4	13	12,5	5	$\Delta\rho$ p. 100

Avant d'en déduire les variations de résistivité dues à 1 p. 100 d'atome déplacé, j'ai admis qu'à la température moyenne des irradiations (-170°C), il y avait restauration d'une partie des défauts de réseau formés dans le palladium et le platine. Me basant sur les résultats obtenus par Blewitt et al. (3) sur la restauration de résistivité du platine irradié à 20°K , j'ai admis un taux de restauration de 20 p. 100 à la température de l'expérience.

J'admets qu'il n'y a pas de restauration de résistivité pour les autres métaux.

La variation de résistivité $(\Delta\rho)d$ ainsi obtenue, par atome p. 100 déplacé de façon durable est portée au tableau général de la page 472.

2^e CAS. — Dans le cas des métaux irradiés par Blewitt et al., on connaît la répartition énergétique du flux neutronique rapide. Sur un flux total de $7,42 \cdot 10^{11}$ n/cm²/seconde seulement $1,704 \cdot 10^{11}$ n/cm²/seconde possèdent une énergie supérieure à $0,025$ MeV et se répartissent dans les énergies conformément à la relation :

$$\varphi(E)dE = 1,508 \cdot 10^{11} (16,7e^{-30,5E} + 1,02e^{-4,51E}) 0,025 \text{ MeV} < E.$$

Comme :

$$\int_0^{\infty} E \cdot e^{-aE} dE = \frac{1}{a} \cdot e^{-aE} \left(E + \frac{1}{a} \right)$$

où a est une constante, on a :

$$\int_{0,025}^{\infty} E\varphi(E)dE = 0,68 \cdot 10^{11}.$$

Les variations de résistivité évaluées d'après la figure 13 correspondent à une irradiation de 160 heures, soit $t = 5,7 \cdot 10^5$ secondes.

Pour les neutrons de 1 MeV les sections efficaces de diffusion élastique du fer, du cobalt, du nickel, du cuivre et du zinc sont données par Walt et Barshall (68). On peut donc évaluer f :

$$\begin{aligned} f_{\text{Fe}} &= 0,65 \cdot 10^{-4}, \\ f_{\text{Co}} &= 0,74 \cdot 10^{-4}, \\ f_{\text{Ni}} &= 0,65 \cdot 10^{-4}, \\ f_{\text{Cu}} &= 0,79 \cdot 10^{-4}, \\ f_{\text{Zn}} &= 1,8 \cdot 10^{-4}, \\ f_{\text{Pt}} &= 0,23 \cdot 10^{-4}. \end{aligned}$$

Les variations de résistivité produites par 1 p. 100 d'atomes déplacés s'en déduisent et sont portées sur le tableau général de la page 472.

Comparaison des mesures de flux. — Les résultats ci-dessus ont permis de tenter de comparer les valeurs des flux de fission disponibles dans des dispositifs d'irradiation similaires de E. L. 2 à Saclay et à Oakridge. Blewitt et al. (2) (3) ont irradié du platine à température de 20°K et ont

étudié la restauration de la résistivité acquise, avec la température. L'évaluation de la résistivité acquise pour 1 p. 100 d'atome déplacé, montre qu'il faut prendre $\Phi_f = 1,4 \cdot 10^{11}$ n/cm²/seconde pour des neutrons ayant une énergie moyenne de 2 MeV pour obtenir la même valeur dans l'expérience de Blewitt et dans la nôtre. Compte tenu de ce qu'à — 170° C le taux de restauration de la résistivité n'est pas constant, il varie entre 3 p. 100 et 35 p. 100, cette valeur du flux serait déterminée avec une erreur relative de 15 p. 100.

La valeur de $\phi = 1,4 \cdot 10^{11}$ n/cm²/seconde trouvée pour les neutrons d'énergie supérieure à 0,2 MeV concerne des neutrons qui auraient par hypothèse une répartition énergétique correspondant à un spectre de fission, avec une énergie moyenne par neutron de 2 MeV. On serait certainement plus près de la réalité en supposant qu'une partie importante du flux neutronique a déjà subi un ralentissement et que l'énergie moyenne par neutron est 1 MeV. En admettant alors avec Seitz et Köehler ((57), p. 311 et 409) que le nombre total d'atomes déplacés par un neutron est sensiblement proportionnel à son énergie, on obtient un flux $\phi = 2,8 \cdot 10^{11}$ n/cm²/seconde pour des neutrons d'énergie supérieure à 200 000 eV.

Valeur absolue des augmentations de résistivités $(\Delta\rho)d$ dues à 1 p. 100 d'atomes déplacés. — Si la variation $(\Delta\rho)d$ de résistivité trouvée pour le cuivre irradié est 5 fois trop faible, on constate que l'application d'un facteur 5 aux résultats obtenus pour les autres métaux conduirait à des valeurs très élevées.

D'après une remarque de M. J. Friedel, dans le cas d'un métal de transition, il serait possible de savoir si le calcul précédent a conduit à une valeur acceptable de $(\Delta\rho)d$. Celle-ci doit en effet être du même ordre de grandeur que l'augmentation de résistivité produite par 1 p. 100 en atomes d'une impureté quelconque. En effet, dans un métal de transition, le rayon d'écran (cf. Friedel (18)) est inférieur au rayon de la sphère atomique et la perturbation électrostatique due à la présence, soit du défaut de réseau, soit de l'impureté est localisée dans un polyèdre atomique. D'autre part, toute perturbation amène un accroissement de résistivité en provoquant des transitions électroniques de la bande *s* à la bande *d*. Au moins pour les métaux à forte densité d'états au niveau de Fermi, les accroissements de résistivité par p. 100 d'impuretés ou de défauts de structure cristalline seront donc sensiblement égaux. Malheureusement, les données expérimentales sur la résistivité des alliages des métaux de transition des seconde et troisième périodes de la classification de Mendelieff sont rares et aucune comparaison systématique n'est possible. Citons :

Dans le fer :

Impureté	Mn	Mo	W	Co	Ni	Cu
$\Delta\rho/p. 100 \mu\Omega\text{cm}$	5	6	4,8	1	1,5	3,5
Référence	Gmelins (1956)					

Dans le cobalt : 1 p. 100 en atomes de fer donne $\Delta\rho = 1,5 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$.

Dans le nickel : 1 p. 100 en atomes de fer donne $\Delta\rho = 0,5 \cdot 10^{-6} \Omega \text{ cm}$.

Dans le platine :

	Mo	W
$\Delta\rho/p. 100 \mu\Omega\text{cm}$	4,8 Nemilow et Voronow (47)	5,13 Rhodes (non publié)

Ces valeurs semblent indiquer des ordres de grandeurs satisfaisants pour les augmentations de résistivité dues aux défauts du réseau qui ont été évaluées.

Valeurs comparées des augmentations $(\Delta\rho)_i$ de résistivité par atome déplacé p. 100. — Les valeurs de $(\Delta\rho)_i$ trouvées varient d'un métal à l'autre.

Pour les métaux de transition du groupe du fer, le cuivre et le zinc irradiés par Blewitt et al., j'ai porté, dans le diagramme 13, les valeurs de $(\Delta\rho)_i$ en ordonnée et les numéros atomiques en abscisse.

De même que dans le cas des métaux de transition des seconde et troisième périodes, la variation trouvée est surprenante en ce sens que les transitions $s \rightarrow d$ devraient être d'autant plus nombreuses — et $(\Delta\rho)_i$ important — que la densité d'états au niveau de Fermi $n(E_F)$ est grande. Le diagramme de la figure 12 (extraite de Daunt (12)) montre que $n(E_F)$ est plus grand pour le niobium, le tantale, le palladium et le

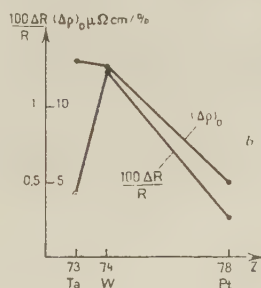
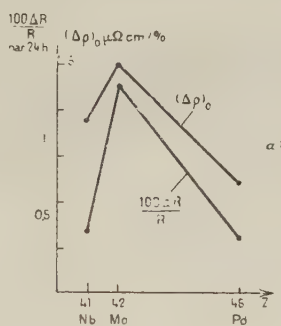


Fig. 14.

platine que pour le molybdène et le tungstène, et par conséquent les augmentations de résistivité $(\Delta\rho)_d$ pour les premiers métaux cités devraient être inférieures à celles du molybdène et du tungstène. Or, c'est en général le contraire que l'on observe ici (fig. 14).

En fait, pour interpréter les résultats obtenus il serait indispensable de connaître parfaitement bien la nature des défauts du réseau considéré, en même temps que la structure électronique du métal étudié. Celle-ci est approximativement déterminée, mais, quant aux défauts du réseau cristallin, l'accord est encore loin d'être fait, ne serait-ce que sur leur description. Dès 1954, Nachtrieb et Handler (49) faisaient remarquer le caractère qualitatif des évaluations d'énergies de formation et de déplacement de lacunes dans le cuivre auxquelles conduisait la description « classique » de celles-ci (Huntington et Seitz (1942)). Nachtrieb et Handler proposaient un modèle de lacune formé d'une zone de 12 à 14 atomes « désordonnés » dans le cristal, autour du site vacant. Il en résultait en particulier que « les mouvements élémentaires ne sont pas des événements isolés, mais des mouvements résultant de la coopération d'un grand nombre d'atomes ».

Par ailleurs, la considération du nombre de « sauts » qu'un défaut effectue avant de disparaître, au cours du processus de restauration, a conduit Lomer et Cottrell (38) à introduire la notion de crowdion, dans lequel les distorsions du réseau sont limitées à une direction cristallographique (110) au lieu d'avoir une symétrie sphérique. Cependant Blewitt et ses collaborateurs (2), étudiant l'influence d'impuretés de différentes dimensions sur la restauration de la résistivité, à 40° K, du cuivre irradié par des neutrons à basse température, arrivent à la conclusion que le défaut mobile n'est pas une lacune, ni un interstitiel, ni un défaut ponctuel simple quelconque. Il *doit* être compliqué et la notion de crowdion elle-même laisserait quelques faits expérimentaux sans explication.

Conclusion.

Ainsi, les résultats expérimentaux dont on dispose actuellement montrent que l'augmentation de résistivité électrique produite par un défaut du réseau cristallin dans un métal de transition dépend de la structure électronique de ce métal. Cependant, si les modèles utilisés actuellement pour les défauts permettent de rendre compte des phénomènes observés de façon semi-quantitative, il ne paraît pas encore possible de comparer les différences d'augmentation de résistivité constatées pour un même nombre de défauts d'un métal de transition à l'autre.

Études de restauration. — Quelques expériences de restauration de la résistivité en fonction de la température ont été réalisées par la méthode des revenus isochrones, sur le niobium, le tantale et le tungstène préalablement irradiés dans le dispositif décrit. Ces résultats, concernant des métaux à point de fusion élevé, ont été publiés (Lucasson (40)). Ajoutés aux données qui existaient sur la restauration de résistivité d'autres métaux, ils montrent que la mobilité des défauts créés par l'irradiation est liée à la fois à l'énergie de cohésion du métal étudié et à la structure de son réseau cristallin. En effet, on peut caractériser sommairement cette mobilité par le rapport des résistivités acquises par irradiation à basse température (par exemple -150°C) ΔR_{-150} à la résistivité acquise qui persiste à température ordinaire (20°C), ΔR_{20} . Ce rapport, ou taux de non-restauration $r = \frac{\Delta R_{20}}{\Delta R_{-150}}$ augmente avec la température absolue de fusion (ou l'énergie de cohésion) du métal.

TABLEAU I

	Fe	V	Nb	Ta	W
T_f °C	1 540	1 735	2 410	2 850	2 10
E_c kcal/mole . .	97	120	184	185	3 410
$r = \frac{\Delta R_{20}}{\Delta R_{-150}}$. . .	0,15 (W) 0,25 (B)	0,45 (W) 0,49 (W)	0,45 (L)	0,52 (L) 0,55 (M)	0,8 (L) 0,9 (T)

Le tableau I rapproche les résultats obtenus dans mes expériences de restauration, repérés par (L), des résultats obtenus par :

Wruck et Wert (73), repérés par (W).

Marx, Cooper, Henderson (44), repérés par (M).

Blewitt et al. (2) (3), repérés par (B).

Thompson (65), repérés par (T), pour des métaux à structure cubique centrée.

Le tableau II rapproche des résultats lus dans les diagrammes publiés par Sosin et Meehan (61) repérés par (S), et certains des auteurs précédents concernant la restauration de métaux de structure cubique à face centrée.

Si l'on porte en abscisse les températures de fusion (ou les énergies de cohésion) et en ordonnée le taux de non-restauration, on constate que les points correspondant aux métaux d'une structure cristalline donnée

TABLEAU II

	Al	Cu	Ni	Pt
$T_{\text{roc.}}$	660	1 083	1 453	1 771
k cal/mole Ec. . .	74,4	81	101	122
$r = \frac{\Delta R_{20}}{\Delta R_{-150}}$. . .	$\simeq 0$ (B)	0,5 (B) 0,2 (S)	0,45 (W) 0,5 (S)	0,8 (B) 0,9 (B)

sont sensiblement alignés (fig. 15). Sosin et Meechan (61) ont montré des courbes de restauration isochrones de résistivité confondues dans le cuivre et le nickel si l'on adopte une échelle réduite de températures pour chaque métal. L'examen de la figure 15 suggère que le phénomène serait général pour les métaux de même structure cristalline.

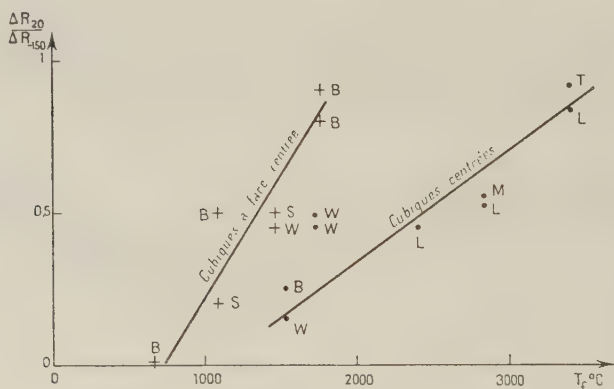


Fig. 15.

Etude de la régulation de la pile atomique.

Lorsqu'un réacteur nucléaire fonctionne dans des conditions données, il se produit des modifications physiques (par exemple un effet de température) ou chimiques (une variation de la composition des barreaux et, tout particulièrement, la formation de composés à très fortes sections efficaces de capture comme Xe^{130}) qui affectent la réactivité. Si un mécanisme de régulation n'était prévu, la puissance ne pourrait se maintenir

constante. Dans E. L. 2 cette régulation est assurée de la façon suivante :

Le niveau d'eau est toujours inférieur au niveau de l'extrémité supérieure des barres d'uranium. Une baisse de puissance, décelée par une chambre d'ionisation placée dans le bouclier de fonte de la pile sera par exemple compensée par une élévation du niveau d'eau lourde dans la cuve, suffisante pour compenser de plus un abaissement simultané d'une plaque de réglage. Le niveau est alors maintenu constant, la puissance étant réglée par l'élévation de la plaque de réglage. Lorsque celle-ci atteint sa cote maximum, on l'abaisse à nouveau en élevant le niveau d'eau lourde, et ainsi de suite.

Plusieurs expérimentateurs avaient remarqué, lors de la préparation d'isotopes radioactifs, que les activités obtenues dans les échantillons soumis au bombardement neutronique n'étaient pas toujours conformes à leurs prévisions. On admettait, à Saclay, une erreur possible sur la puissance de ± 17 p. 100, qui était attribuée à l'imprécision des chambres et de la chaîne de mesure et de régulation. On admettait également une influence de la plaque de réglage, soumise à de fréquents déplacements en hauteur, sur le flux neutronique reçu par les canaux ou appareils de mesure les plus proches. Pour cette raison, la plaque de réglage en service était placée à l'angle Nord-Ouest de la pile, diamétralement à l'opposé de la chambre de régulation de puissance afin de ne pas influencer celle-ci. Ces inconvénients étaient considérés comme inévitables.

De nombreuses mesures de résistivité de métaux bombardés à basse température m'ont donné l'occasion de noter des variations « d'efficacité » des flux neutroniques dont la périodicité m'a permis de rechercher les causes et de déceler des perturbations plus accidentelles.

Le point de départ de ce travail est la courbe de variation de résistances électriques en fonction du temps déjà publiée (Lucasson (40), fig. 2 a) se référant à un échantillon de tantale et deux échantillons de niobium pendant une semaine d'irradiation. On constate les premiers jours une diminution progressive de la variation de résistivité électrique par 24 heures. Les flux intégrés avaient été déterminés simplement en multipliant le flux donné par les techniciens de la pile par le temps d'irradiation.

Le phénomène est encore plus apparent avec des métaux tels que le molybdène ou le tungstène pour lesquels l'irradiation en pile donnait des variations relatives de la résistance électrique trois fois plus importantes que pour le niobium et le tantale. La figure 16 (a) représente la variation de résistance électrique par 24 heures mesurée sur un des échantillons de tungstène. On peut admettre qu'elle est proportionnelle au flux neutronique.

Beaucoup d'irradiations donnant des formes de courbes analogues, semaine après semaine, m'amènèrent à penser que le phénomène était

lié à « l'empoisonnement » des barreaux d'uranium par le xénon. J'ai alors effectué de nombreuses moyennes de hauteurs de plaques et de niveaux d'eau lourde, d'après les données de feuilles de fonctionnement de la pile. J'ai comparé les hauteurs moyennes de plaques et de niveau

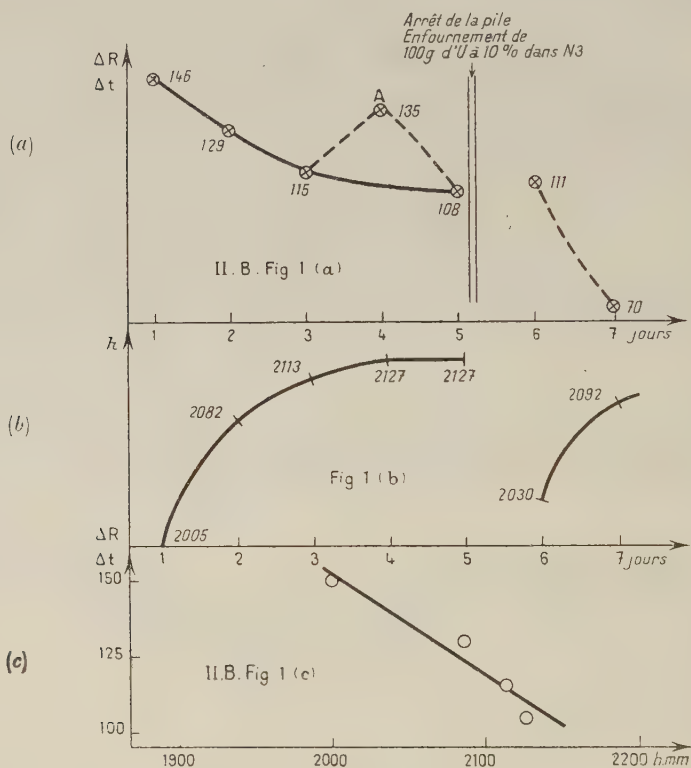


Fig. 16.

d'eau, entre deux mesures de résistivité électrique, avec les variations de résistivité correspondantes.

Les observations suivantes en découlent :

Tant que l'équilibre de l'empoisonnement n'est pas atteint, le niveau d'eau lourde varie plusieurs fois par jour. Entre chaque variation du niveau d'eau, la plaque de réglage passe au moins une fois par sa cote maximum et sa cote minimum. En 24 heures, les perturbations de flux

dues à la plaque de réglage sont donc compensées. En fin de semaine, l'empoisonnement est à l'équilibre et le niveau d'eau ne change plus pendant deux jours, tandis que la plaque de réglage est relevée lentement. Il devrait donc être possible de déceler une diminution de flux dans le canal due au voisinage de la plaque, en fin de semaine de fonctionnement. Bien que le canal N. 4 soit le plus proche de la plaque de réglage, les mesures montrent que cet effet est faible.

La hauteur du niveau d'eau, qui croît rapidement au démarrage de la pile semble nettement influencer la valeur du flux neutronique dans le canal.

La figure 16 (b) représente la valeur moyenne du niveau d'eau lourde entre deux mesures, déduite des relevés des feuilles de quart. La figure 16 (c) représente, en unités arbitraires, les variations du flux en fonction du niveau d'eau lourde, que l'on pourrait en déduire. On voit que lorsque le niveau passe de 2 005 à 2 127 mm, le flux décroît de 25 p. 100 environ (Il n'a pas été tenu compte de l'erreur due au décalage du niveau introduite par la circulation de l'eau, erreur qui doit être sensiblement constante. Cette circulation introduit de plus dans la lecture du niveau une erreur certainement supérieure au millimètre, dont il n'est pas possible de tenir compte).

La recherche des écarts dans les mesures, attribuables à ce phénomène pendant la durée des irradiations, m'amena à constater une autre cause de perturbation des flux dans un canal, à savoir l'introduction en quantité notable d'un échantillon possédant une section efficace d'absorption importante, dans un canal voisin. A l'arrêt, effectué au cinquième jour de marche (fig. 16 (a)) furent introduits dans le canal N. 3, 100 g d'uranium enrichi à 10 p. 100 d'uranium 235. La mesure que j'ai effectuée le jour suivant, montre la forte baisse de variation de résistivité mesurée. La paratie correspondante de la figure (16 b) montre la perturbation apportée dans la marche de la pile. Le premier niveau d'eau lourde nécessaire pour atteindre la puissance de 2 000 kW était de 2 008 mm le 28 octobre 1957 alors qu'elle était de 1 956 mm le 22 octobre 1957, soit une différence de 32 mm. Pour la première journée, le niveau moyen est passé de 2 005 à 2 030 mm.

INTERPRÉTATIONS PROPOSÉES. — *Rôle du niveau d'eau lourde.* — Il m'a semblé qu'il était possible de comprendre le comportement de la pile E. L. 2 à partir des considérations géométriques suivantes :

Considérons les répartitions des flux de neutrons thermiques dans les canaux verticaux appelés canaux de chimistes indiquées dans la figure 17 (tirée du rapport P. 11 du C. E. N. de Saclay). Si le canal de chimiste considéré était percé jusqu'à la cote du fond de la cuve, la forme de la courbe de répartition de flux serait semblable à celle du canal central. La portion de courbe B_0B_1 correspond à la répartition du flux dans l'eau lourde, la portion B_1B_2 au flux dans l'air. Dans le

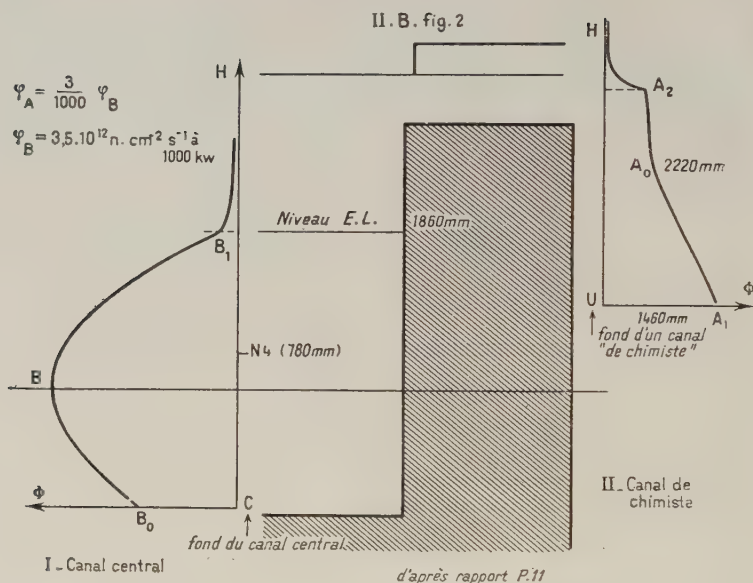


Fig. 17.

graphite la courbe est déformée et le point B_1 qui était à la cote 1 860 mm, c'est-à-dire au niveau d'eau lourde, vient à la cote de A_1 dans le canal de chimiste, soit 2 220 mm.

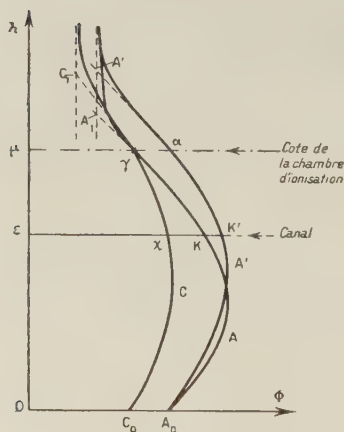


Fig. 18.

L'examen d'un plan de la pile montre que les chambres d'ionisation sont placées à une distance de la cuve voisine de celle des canaux de chimistes. Dans ces conditions, et en l'absence de données plus précises, il paraît licite d'estimer que la répartition du flux neutronique le long d'une verticale Oh passant par la chambre, est la même que le long de l'axe dudit canal.

Prenons $\vec{Oh}$ comme axe des ordonnées et portons en abscisse les flux neutroniques $\varphi(h)$ sur l'axe $\vec{O\Phi}$ perpendiculaire à $\vec{Oh}$.

Soit, pour un niveau d'eau lourde donné, une répartition de flux le

long de l'axe $\vec{Oh}$, représentée par la courbe $A_0A\gamma$ (fig. 18). L'origine O est au niveau du fond de la cuve. Soient $(a$ et $\varphi(a))$ les coordonnées du point A, etc. La chambre, placée à une cote μ mesure le flux $\varphi(\gamma) = \overline{\mu\gamma}$. Le flux maximum est $\varphi(A)$.

Faisons varier le niveau d'eau lourde h d'une valeur Δh , en maintenant constant le flux maximum. Il est évident que $\varphi(a_0)$ reste sensiblement constant. La courbe A_0A subit une affinité d'axe $O\Phi$ et de rapport $\left(1 + \frac{\Delta h}{h}\right)$ qui la transforme en $A_0A'\alpha$. Dans ces conditions, le flux mesuré par la chambre n'est plus $\varphi(\gamma) = \overline{\mu\gamma}$ mais $\varphi(\alpha) = \overline{\mu\alpha} > \overline{\mu\gamma}$, et si le tableau de commande indiquait la puissance P, il affiche maintenant la puissance :

$$P' = P \times \frac{\overline{\mu\alpha}}{\overline{\mu\gamma}} = P \left(1 \times \frac{\overline{\gamma\alpha}}{\overline{\mu\gamma}}\right).$$

Le système régulateur abaissera alors automatiquement la plaque de réglage de façon à ramener le flux mesuré à $\varphi(\gamma)$ et par conséquent la puissance indiquée à P. Le flux le long de Oh sera alors représenté par la courbe $C_0C\gamma$ déduite de $A_0A'\alpha$ par une affinité d'axe Oh et de rapport $\frac{\overline{\mu\gamma}}{\overline{\mu\alpha}}$.

Soit ε la cote de l'axe du canal expérimental (horizontale : N. 4) considéré, soient K, K' et X les points d'intersection de la droite $h = \varepsilon$ avec les courbes $A_0A\gamma$, $A_0A'\alpha$ et $C_0C\gamma$. La variation totale de flux neutronique provoquée par le réglage est mesurée par $\overline{XK} = \overline{XK'} + \overline{K'K}$.

Le terme $\overline{K'K}$ est dû au déplacement du maximum de la courbe. Il sera probablement négligeable parce que les canaux sont placés près de ce maximum.

Le terme $\overline{XK'}$ est dû à l'affinité de rapport $\frac{\overline{\mu\gamma}}{\overline{\mu\alpha}}$. Il provoque une variation relative de flux :

$$\frac{d\varphi}{\varphi} = \frac{\overline{XK'}}{2K'} = \frac{\overline{\gamma\alpha}}{\overline{\mu\alpha}}.$$

Pour l'évaluer, il suffit de revenir à la figure 2, tracée d'après des mesures effectuées par le groupe de physique des piles de Saclay. On constate que pour $\mu = 1\ 900$ mm par exemple, une variation de niveau d'eau lourde de 200 mm, entraînera une variation de flux de 25 p. 100 pour $h = 2\ 200$ mm et de 20 p. 100 pour $h = 1\ 800$ mm, ce qui est bien en accord avec les valeurs trouvées plus haut.

L'examen de la figure 3 montre de plus que les variations de flux dans les canaux expérimentaux dues au terme $\overline{XK'}$ seraient réduites au minimum si les chambres étaient placées très loin de la surface de l'eau lourde (par exemple, au fond de la cuve). Dans ce cas les variations

seraient uniquement dues au terme $\overline{KK'}$ dont on a vu qu'il devait être relativement faible.

Autres confirmations expérimentales. — Le fait que cette évaluation grossière fait attendre des fluctuations d'intensité neutronique de 20 à 28 p. 100 est en accord avec l'évaluation de l'erreur de régulation à 17 p. 100, soit 34 p. 100.

Il m'a cependant paru intéressant d'essayer de confirmer (ou éventuellement d'infirmar) les résultats ci-dessus, par une autre technique, par exemple par des mesures d'activations de témoins radioactifs. Mis au courant des faits relatés précédemment, le service physique des piles de Saclay, fit effectuer des mesures de contrôle qui établirent qu'une variation de niveau d'eau lourde de 73 mm entraîne une variation de flux neutronique dans N. 4 de 10 p. 100.

TABEAU

D'après le rapport P. 18.

Mesures effectuées par MM. Kempf et Navarre :		
$h^1 = 1\ 950\text{ mm}$	$\Phi^1 = 2,707 \cdot 10^{12}$	Date : 17-3-1958
$h_2 = 2\ 023\text{ mm}$	$\Phi_2 = 2,45 \cdot 10^{12}$	Date : 21-3-1958
$\frac{\Phi_1 - \Phi_2}{\frac{1}{2}(\Phi_1 + \Phi_2)} = 0,1$		
<i>Nota :</i> Les hauteurs des plaques de réglage au moment des mesures étaient sensiblement égales.		

On établit de plus qu'une variation de niveau de 200 mm entraînait une variation de 10 p. 100 du flux au fond du canal de chimiste X. Ce résultat vient à l'appui de ce qui précède, car il permet de comparer les pentes des tangentes à $A_0A\gamma$ et $C_0C\gamma$ en γ . L'ordre de grandeur du phénomène est bien ce à quoi l'on s'attendait.

Chargement des canaux voisins. — Les courbes situées à droite des figures 16 a et b montrent que la baisse de flux enregistrée, lorsqu'on introduit un absorbeur de neutrons dans un canal voisin, ne peut s'expliquer entièrement par la variation du niveau d'eau lourde de la pile. L'hypothèse la plus vraisemblable est qu'il s'y ajoute une dépression locale du flux thermique, et cet effet serait le plus important.

Conclusion. — Ainsi, certains défauts de régulation de la pile E. L. 2, décelés l'an passé au cours d'un travail qui avait de tout autres buts, sont aujourd'hui à la fois confirmés et expliqués.

Ces défauts étaient considérés jusqu'ici comme inévitables parce que attribués au manque de fidélité des chambres d'ionisation et à la structure des chaînes de contrôle et de régulation. Le présent travail montre qu'il devrait être assez facile d'y remédier dans une large mesure.

En l'occurrence les mesures de résistivité, destinées à étudier la physique du solide, ont pu être utiles pour déterminer la constance de flux. Les installations de comptage actuellement utilisées pour les mesures d'activation permettent de limiter les erreurs relatives à ± 3 p. 100 dans les meilleurs cas. Il serait aisé d'obtenir dix fois mieux en mesurant les résistivités dues à l'effet Wigner.

CONCLUSION

Le but de ce travail était d'étudier les défauts de structure cristalline produits dans des métaux sous l'action des rayonnements d'une pile atomique.

J'ai construit un appareil, refroidi par de l'azote liquide, qui permet d'irradier des échantillons dans la pile atomique E. L. 2 de Saclay. Les échantillons de métaux de transition des seconde et troisième périodes de la classification périodique ont été irradiés et les variations de résistivité ont été mesurées pendant la marche de la pile.

1) En ce qui concerne l'appareil, j'ai cherché à réaliser des conditions expérimentales aussi homogènes que possible dans l'enceinte d'irradiation, au point de vue de l'intensité du flux neutronique et des températures des échantillons. Une des difficultés à surmonter provenait des faibles dimensions transversales du canal expérimental disponible et de sa disposition horizontale qui ne permettaient pas d'avoir, dans cette enceinte, une quantité d'azote liquide capable de constituer un « volant » thermique efficace. Une autre difficulté venait de la disposition radiale du canal par rapport à la cuve cylindrique de la pile, qui fait que le flux de neutrons thermiques décroît très rapidement quand on s'éloigne du fond du canal.

Un convertisseur à section extérieure rectangulaire a été construit. Le flux neutronique de fission le long de son axe a été évalué, ainsi que la chaleur totale dégagée et la température de points chauds. Les mesures effectuées par la suite ont permis une comparaison de la valeur absolue du flux neutronique rapide qu'il permet d'obtenir avec la valeur des flux disponibles dans les dispositifs réalisés à Oakridge. On trouve : $2,8 \cdot 10^{11}$ n/cm²/seconde pour des neutrons d'énergie supérieure à

200 000 eV en supposant dans ce dernier cas que l'énergie moyenne par neutron est de 1 MeV.

Le dispositif d'irradiation proprement dit, qui plonge dans le convertisseur, est composé d'un long vase de Dewar métallique renfermant une ampoule de silice fondue qui contient les échantillons à irradier. La régulation de la température y est assurée par un dispositif d'alimentation en azote liquide de type « tout ou rien ».

Les variations de résistance électrique des échantillons sont mesurées à l'aide d'un pont de Kelvin. Un dispositif très simple permet de mesurer la résistance électrique des conducteurs et d'en corriger les valeurs trouvées pour les échantillons.

2) Des mesures de variations de résistivité pendant l'irradiation à basse température ont été effectuées sur le niobium, le molybdène, le palladium, le tantale, le tungstène et le platine. Elles ont conduit à l'évaluation des augmentations de résistivité dans ces métaux $(\Delta\rho)_d$ correspondant à 1 p. 100 d'atomes déplacés. On constate que les valeurs de $(\Delta\rho)_d$ trouvées sont bien de l'ordre de grandeur des variations de résistivité produites par 1 p. 100 de diverses impuretés dissoutes dans ces métaux.

Une évaluation analogue a été faite pour les métaux de transition irradiés par Blewitt et al. (3).

L'ensemble des résultats montre que la structure électronique du métal irradié joue un rôle important dans l'augmentation de résistivité produite par les atomes déplacés dans le réseau cristallin.

La comparaison des températures de fusion des métaux étudiés et du taux de restauration des défauts du réseau cristallin suggère que dans les métaux de même structure cristalline, les processus de restauration sont identiques.

Les mesures de résistivité électrique, effectuées à intervalles de temps réguliers ont accessoirement permis d'étudier la régulation de la pile atomique.

Il serait intéressant de compléter ce travail par des irradiations de métaux de transition formant des périodes complètes de la classification de Mendeleïeff. Une étude systématique de ce genre pourrait se faire dans des conditions encore meilleures dans un canal vertical. En effet, pour un flux constant dans toute l'enceinte d'irradiation, le volume de celle-ci serait multiplié par dix, ce qui diminuerait d'autant le nombre des irradiations. De plus, le bombardement neutronique s'effectuerait vraiment à la température de l'azote liquide. Il serait inutile de recourir à des moyennes pour avoir des résultats comparables.

BIBLIOGRAPHIE

1. F. J. BLATT. — *Solid State Physics*, 1957, **4**, 318.
2. T. H. BLEWITT et al. — *J. Appl. Phys.*, 1957, **28**, 639.
3. T. H. BLEWITT et al. — *Creep and Recovery*. A. S. M., 1957, 84.
4. J. A. BRINKMAN, C. E. DIXON et C. J. MEECHAN. — *Act. Met.*, 1954, **2**, 38.
5. G. B. CHILDS. — *A. E. R. E. M/M* 33, 1954.
6. J. W. CLELAND, J. H. CRAWFORD et D. K. HOLMES. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 722.
7. B. R. COLES. — *Phil. Mag.*, 1958, **7**, 25, 40.
8. R. R. COLTMAN, T. H. BLEWITT et T. S. NOGGLE. — *Rev. Sci. Inst.*, 1957, **28**, 5.
9. H. G. COOPER, J. S. KOEHLER et J. W. MARX. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 496.
10. H. G. COOPER, J. S. KOEHLER et J. W. MARX. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 597.
11. J. W. CORBETT et al. — *Phys. Rev.*, 1957, **108**, 4.
12. J. G. DAUNT. — *Progress in Low Temperatures Physics*. Gorter, editor, 1955.
13. G. J. DIENES. — Conférence de Genève, 1955. Rapport 8/P/750.
14. DELATTRE. — Rapport C.E.A.-G.P. 12 100/900, 1957.
15. R. A. DUGDALE. — Reports of the Conference on Defects in crystalline Solids. London, *Phys. Soc.*, 1955.
16. D. T. EGGEN et M. J. LAUBENSTEIN. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 238.
17. EMEL'YANOV et al. — *Atomnaja Energia*, 1957, **2**, 43.
18. J. FRIEDEL. — *Adv. in Phys.*, 1954, **3**, 446.
19. J. FRIEDEL. — *Action des rayonnements de grande énergie sur les solides*. Gauthier-Villars, 1956.
20. J. FRIEDEL. — *Canad. J. Phys.*, 1956, **34**, 12 A, 1190.
21. M. GAUZIT et T. KAHAN. — *Contrôle et protection des réacteurs nucléaires*. Dunod, 1957.
22. A. N. GERRITSEN. — *Hand. der Phys.*, 1956, **19**, 137.
23. S. GLASSTONE et M. C. EDLUND. — *The elements of Nuclear Reactor Theory*. Van-Nostrand, 1957.
24. W. HARRISON et F. SEITZ. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 1530.
25. F. E. HOARE et J. C. MATTHEWS. — *Proc. Roy. Soc.*, 1952, **212**, 137.
26. D. J. HUGHES. — *Pile Neutron Research*. Addison Wesley Inc., 1953.
27. H. B. HUNTINGTON et F. SEITZ. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1728.
28. H. B. HUNTINGTON. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1414.
29. W. R. G. KEMP et al. — *Phil. Mag.*, 1955, **46**, 378-811.
30. W. R. G. KEMP et al. — *Austr. J. Phys.*, 1956, **9**, 2, 180.
31. KEMPF et NAVARRE. — Rapport C.E.A.-P. 18, 1958.
32. H. M. KENWORTHY. — *NAASR*, 1955, 1452.
33. H. M. KENWORTHY et H. H. NEELY. — *NAASR*, 1956, 1580.
34. CH. KITTEL. — *Introduction to solid state Physics*. J. Wiley and Sons, New York, 1956.
35. C. E. KLABUNDE et al. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1957, **2**, II, 3, 151, A.
36. E. E. KLONITZ. — *Thèse*, Purdue University, 1952.
37. C. J. KRIESSMAN. — *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 1.
38. W. M. LOMER et A. H. COTTRELL. — *Phil. Mag.*, 1955, **46**, 711.
39. W. M. LOMER et W. MARSHALL. — *Phil. Mag.*, 1958, **3**, 26.

40. P. LUCASSON. — *C. R.*, 1957, **245**, 796.
41. D. K. C. MACDONALD. — *Hand. der Phys.*, 1956, **14**, 137.
42. A. W. MACREYNOLDS et al. — *Phys. Rev.*, 1955, **98**, 2, 418.
43. D. G. MARTIN. — *Acta Met.*, 1957, **5**, 371.
44. J. W. MARX, H. G. COOPER et J. W. HENDERSON. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 106.
45. C. J. MEECHAN et NAASER, 1954, 1079.
46. N. F. MOTT et H. JONES. — *The Theory of the properties of metals and alloys*. Clarendon Press, 1936.
47. NEMILOW et VORONOW. — *Ann. Sekl. Platin. Ak. Naouk S.S.S.R.*, 1934, **14**, 157.
48. J. W. MOTZ. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 753.
49. N. H. NACHTRIEB et G. S. HANDLER. — *Acta Met.*, 1954, **2**, 797.
50. T. S. NOGGLE et al. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1957, **21**, **2**, **11**; **3**, 151, B.
51. A. S. NOWICK. — *Acta Met.*, 1955, **3**, 1955.
52. A. W. OVERHAUSER. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 3, 393.
53. A. W. OVERHAUSER et GORMAN. — *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 676.
54. RAJEVSKI. — Rapport C.E.A., S. P. S., 1954, 18; Rapport C.E.A., D., 1957, 12.
55. J. B. SAMPSON, H. HURWITZ et H. F. CLANCY. — *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 1657.
56. F. SEITZ. — *Disc. Far. Soc.*, 1949, 271.
57. F. SEITZ et J. S. KOEHLER. — *Solid State Physics*, 1956, **2**, 305.
58. R. O. SIMMONS. — *Univ. of Illinois*, 1957, 384.
59. R. O. SIMMONS et R. W. BALUFFI. — *Phys. Rev.*, 1958, **109**, 2.
60. W. S. SNYDER et J. NEUFELD. — *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 1636; 1956, **103**, 862.
61. A. SOSIN et C. J. MEECHAN. — *NAASR*, 1957, 2062.
62. E. C. STONER. — *Acta Met.*, 1954, **2**, 259.
63. D. O. THOMPSON et D. K. HOLMES. — *J. Appl. Phys.*, 1956, **27**, 713.
64. D. O. THOMPSON et D. K. HOLMES. — *J. Phys. Chem. Solids*, 1957, **1**, 275.
65. M. W. THOMPSON. — Communication personnelle, 1957.
66. J. M. TOBIN. — *G.E.A.E.C./H.W.*, 1957, **51**, 751.
67. R. W. VOOK. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1958, **3**, **11**, **1**.
68. M. WALT et H. H. BARSHALL. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1062.
69. I. WARSHAWSKI. — *Rev. Scient. Inst.*, 1955, **26**, 711.
70. G. K. WHITE. — *Can. J. Phys.*, 1956, **34**, 12 A, 1328.
71. G. K. WHITE et S. B. WOODS. — a) *Can. J. Phys.*, 1957, **35**, 248; b) *Can. J. Phys.*, 1957, **35**, 656; c) *Can. J. Phys.*, 1957, **35**, 892.
72. N. M. WOLCOTT. — Conférences de Physique des basses températures, 2-8 septembre 1955.
73. D. WRUCK et C. WERT. — *Acta Met.*, 1955, **3**, 115.

DEUXIÈME THÈSE

PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ

**Application de la diffraction des neutrons
à la physique des solides.**

VU ET APPROUVÉ :

Paris, le 31 mai 1958.

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

J. PÉRÈS.

VU ET PERMIS D'IMPRIMER :

*Pour le Recteur de l'Académie de Paris,
Le Vice-Président du Conseil de l'Université
de Paris,*

J. PÉRÈS.

